

**ZUR FRAGE OPTIMALER  
TRAJEKTORIEN KONTINUIERLICH BETRIEBENER  
RÜHRKESSELREAKTOREN**

**Ein Vergleich theoretischer und experimenteller Ergebnisse**

von

**Ulrich Hoffmann**

**Erlangen 1972**

**1972 # 33 6**



# **ZUR FRAGE OPTIMALER TRAJEKTORIEN KONTINUIERLICH BETRIEBENER RÜHRKESSELREAKTOREN**

Ein Vergleich theoretischer und experimenteller Ergebnisse

Der Technischen Fakultät  
der Universität Erlangen-Nürnberg  
zur Erlangung des Grades  
**DOKTOR - INGENIEUR**

vorgelegt

von

**Ulrich Hoffmann**

Erlangen 1972



Als Dissertation genehmigt von der  
Technischen Fakultät  
der Universität Erlangen - Nürnberg

Tag der Einreichung: 8. 2. 1972

Tag der Promotion: 8. 5. 1972

Dekan: Prof. Dr. O. Molerus

Berichterstatter: Prof. Dr. H. Hofmann

Prof. Dr. B. Dejon

## Inhaltsverzeichnis

|         |                                                         |    |
|---------|---------------------------------------------------------|----|
| 1.      | Herleitung des Themas                                   | 1  |
| 2.      | Entwurf und Beschreibung der Versuchsa-<br>pparatur     | 5  |
| 2.1     | Modellreaktion                                          | 8  |
| 2.2     | Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor                  | 8  |
| 2.3     | Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor                   | 9  |
| 2.4     | Gesamte Versuchsaapparatur für die Ester-<br>verseifung | 10 |
| 3.      | Modellgleichungen der Rührkesselreaktoren               | 13 |
| 3.1     | Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor                  | 13 |
| 3.1.1   | Erstellung der Modellgleichungen                        | 13 |
| 3.1.2   | Bestimmung der unbekannten Parameter                    | 14 |
| 3.1.2.1 | Aktivierungsenergie und Stoßfaktor                      | 14 |
| 3.1.2.2 | Reaktorvolumen                                          | 15 |
| 3.1.2.3 | Wärmekapazität der Reaktorwand                          | 18 |
| 3.1.2.4 | Adiabase                                                | 18 |
| 3.1.3   | Experimentelle Überprüfung der Modell-<br>gleichungen   | 20 |
| 3.2     | Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor                   | 31 |
| 3.2.1   | Erstellung der Modellgleichungen                        | 31 |
| 3.2.2   | Bestimmung der unbekannten Parameter                    | 35 |
| 3.2.2.1 | Wärmedurchgangskoeffizient und Heizmedium-<br>durchfluß | 35 |
| 3.2.2.2 | Reaktorvolumen                                          | 42 |
| 3.2.2.3 | Zusätzliche Wärmekapazitäten                            | 42 |

|         |                                                                                                          |    |
|---------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 3.2.3   | Experimentelle Überprüfung der Modellgleichungen                                                         | 44 |
| 4.      | Mathematische Grundlagen und Methoden zur Ermittlung zeitoptimaler Trajektorien                          | 47 |
| 4.1     | Problemstellung und notwendige Bedingungen                                                               | 47 |
| 4.2     | Lösungsmethoden                                                                                          | 52 |
| 4.2.1   | PONTRJAGIN-Methode                                                                                       | 53 |
| 4.2.2   | Abstieg im Funktionenraum                                                                                | 56 |
| 4.2.3   | Quasilinearisierung                                                                                      | 61 |
| 4.2.4   | Min-H-Methode                                                                                            | 66 |
| 4.2.5   | Hill-Climbing an Parametern                                                                              | 67 |
| 5.      | Optimale Trajektorien der Rührkesselreaktoren                                                            | 70 |
| 5.1     | Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor                                                                   | 70 |
| 5.1.1   | Ermittlung der zeitoptimalen Steuerfunktionen und der zugehörigen Trajektorien für die Modellgleichungen | 70 |
| 5.1.1.1 | Aufstellung und Analyse der Hamiltonfunktion                                                             | 70 |
| 5.1.1.2 | Synthese der optimalen Steuerung                                                                         | 76 |
| 5.1.1.3 | Ermittlung der Schaltzeiten                                                                              | 80 |
| 5.1.2   | Vergleich simulierter und experimenteller Ergebnisse                                                     | 83 |
| 5.2     | Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor                                                                    | 96 |
| 5.2.1   | Ermittlung der zeitoptimalen Steuerfunktionen und der zugehörigen Trajektorien für die Modellgleichungen | 96 |
| 5.2.1.1 | Skalierung der Modellgleichungen und Aufstellung des adjungierten Differentialgleichungssystems          | 96 |

|         |                                                                              |     |
|---------|------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 5.2.1.2 | Fortran-IV-Rechenprogramme                                                   | 101 |
| 5.2.1.3 | Effektivität der Rechenprogramme und<br>Ermittlung der optimalen Steuerung   | 111 |
| 5.2.2   | Vergleich simulierter und experimenteller<br>Ergebnisse                      | 114 |
|         | <u>Anhang</u>                                                                | 128 |
| A.1     | Auslegen und Eichen der Versuchsapparatur                                    | 128 |
| A.1.1   | Erfassung des Reaktionsablaufes mit Hilfe<br>einer Leitfähigkeitsmessung     | 128 |
| A.1.2   | Abschätzung der Zeitkonstanten der Modell-<br>reaktion                       | 130 |
| A.1.3   | Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor                                       | 131 |
| A.1.4   | Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor                                        | 131 |
| A.1.5   | Eichung der Thermoelemente                                                   | 134 |
| A.1.6   | Eichung der selbstgebauten Leitfähigkeits-<br>meßzellen                      | 135 |
| A.1.7   | Eichung der Schwebekörper-Durchflußmesser                                    | 135 |
| A.2     | Variationsgleichungen und notwendige Be-<br>dingungen optimaler Trajektorien | 136 |
| A.2.1   | Variationsgleichungen                                                        | 136 |
| A.2.2   | Notwendige Bedingungen für ein Minimum                                       | 141 |
| A.2.2.1 | Unbeschränkter Steuervektor                                                  | 141 |
| A.2.2.2 | Beschränkter Steuervektor                                                    | 144 |
|         | Symbolverzeichnis                                                            | 151 |
|         | Literaturverzeichnis                                                         | 155 |



Digitized by the Internet Archive  
in 2026

## 1. Herleitung des Themas

---

In den letzten Jahrzehnten hat sich die chemische Reaktionstechnik von der globalen Beschreibung eines Reaktionsapparates gelöst. Man bemüht sich heute, das komplexe Geschehen in einem chemischen Reaktor in die wesentlichen Grundphänomene zu zerlegen, deren Gesetzmäßigkeiten bereits bekannt sind oder getrennt studiert werden können. Im allgemeinen führt eine solche Analyse zur Kinetik der interessierenden Reaktionen, zur Hydrodynamik und zu den dominierenden Wärme- und Stofftransportmechanismen.

Natürlich ist es nicht immer einfach, den Gesamttablauf in einzelne, physikalisch sinnvolle Teilschritte aufzuspalten. So waren z.B. noch 1960 auf dem zweiten Weltkatalysekongreß 30% der vorgestellten Meßergebnisse für Reaktionsgeschwindigkeiten von Diffusionseffekten überlagert und wurden daher falsch interpretiert [1]. Jedoch hat sich gerade in den letzten Jahren die Situation grundlegend geändert, so daß zur Zeit fast alle Arbeiten auf dem Gebiet der Reaktionstechnik das Geschehen in einem Reaktor physikalisch sinnvoll analysieren.

Eine hinreichend genaue Kenntnis der wesentlichen Grundphänomene und deren Zusammenwirkung ermöglicht es, ein mathematisches Modell für einen bestimmten Reaktortyp aufzustellen, das physikalisch begründet ist, und das gegenüber einem mit Hilfe der Statistik (Korrelation und Regression) gewonnenen Modell den Vorteil bietet, daß es auch maßvolle Extrapolationen zuläßt<sup>1)</sup>. Die Grundlage für eine solche Synthese eines Reaktormodells bilden die Material-, Energie- und Impulsbilanzgleichungen. Dieses mathematische Modell gestattet es dann, für eine vorgegebene Produktionshöhe und Produktreinheit die Form und Größe des Reaktors sowie die erforderlichen Betriebsbedingungen festzulegen.

---

1) Eine ausführliche Darstellung der gegenwärtigen Modellvorstellungen von chemischen Reaktoren findet man z.B. bei SLINKO [2].

Für den stationären Betrieb kontinuierlich arbeitender Reaktoren hat sich ein derartiges Vorgehen in den meisten Fällen bewährt: Einerseits stimmt das so vorausberechnete mit dem tatsächlichen Verhalten des Reaktors oft gut überein<sup>1)</sup>, und andererseits erweist sich das Studium der Grundphänomene und die darauf aufbauende Rechnung gegenüber dem Messen und Rechnen an schrittweise vergrößerten Versuchsanlagen als wirtschaftlicher.

Bei der immer stärker werdenden Konkurrenz in der Technik spielt die Wirtschaftlichkeit die bedeutendste Rolle. Daher bemüht man sich, nicht nur den wirtschaftlichsten Weg für die Auslegung eines Reaktors zu beschreiten, sondern versucht auch den Reaktor selbst so wirtschaftlich wie möglich zu gestalten und zu betreiben. Auch für solche Probleme erweist sich die Erstellung eines physikalisch begründeten, mathematischen Modells als zweckmäßig. Man kann nämlich mit Hilfe der Modellgleichungen verschiedene, auch extreme Betriebsbedingungen risikolos und im Vergleich zum Experiment schnell simulieren und prüfen, welcher Betriebspunkt sich hinsichtlich einer gestellten Forderung als besonders günstig erweist. Für das Aufsuchen solcher optimalen Betriebspunkte stehen heute dem Chemie-Ingenieur eine Reihe von erprobten Optimierungsmethoden zur Verfügung [ 3 ] .

Für optimal ausgelegte Reaktoren sind die häufig erforderlichen extremen Betriebsbedingungen oft nur schwer oder überhaupt nicht ohne geeigneten Regler zu realisieren. Kleine, unvermeidbare Schwankungen der Reaktoreingangsgrößen können eventuell zu großen periodischen Schwankungen der Reaktorausgangsgrößen oder sogar zum Durchgehen des Reaktors führen. Um einen sicheren Reaktorbetrieb auch für extreme Betriebspunkte zu gewährleisten, wird dem dynamischen Verhalten von Reaktoren eine verstärkte Aufmerksamkeit geschenkt werden. Man weiß

---

1) Ein Grund hierfür ist unter anderem, daß sich in der Regel stationäre Betriebszustände relativ leicht beschreiben lassen (Gleichungen) und daß sich hierbei erfahrungsgemäß Modellschwächen nicht so stark auswirken wie z.B. bei der Beschreibung instationärer Betriebszustände (Differentialgleichungen).

heute durch das Studium der instationären Modellgleichungen, daß Reaktoren auch ohne Regler, d.h. ohne äußere Rückführung, aufgrund innerer Rückkopplungen instabil werden können [4], und man kann für einzelne Typen anhand von Stabilitätsdiagrammen das dynamische Verhalten in der Nähe gewählter Betriebspunkte voraussagen [5]. Für eine solche Stabilitätsanalyse des Reaktors, welche die Auswahl eines linearen Reglers ermöglicht, linearisiert man in der Regel die stark nichtlinearen, instationären Material-, Energie- und Impulsbilanzgleichungen. Ein derartiges Vorgehen ist jedoch nur dann gerechtfertigt, wenn man voraussetzt, daß im Betrieb nur relativ kleine Störungen auftreten.

Neuerdings versucht man das dynamische Verhalten von kontinuierlich betriebenen Reaktoren für große Abweichungen vom stationären Betriebspunkt zu analysieren. Hierbei ist eine Linearisierung der Modellgleichungen unzulässig, und die Untersuchung muß an den stark nichtlinearen, instationären Bilanzgleichungen selbst erfolgen. Probleme, die eine solche Analyse erfordern, sind z.B. der Betrieb von Reaktoren, denen periodische Schwankungen zur Umsatzsteigerung aufgezwungen werden [6], [7], die Grenzzyklen (Selbstoszillationen) kontinuierlich arbeitender Reaktoren [8], die Regelung von stark gestörten Reaktoren [9] oder das zeitoptimale An- und Abfahren von kontinuierlich betriebenen Reaktoren [10], [11].

Bei der theoretischen Lösung der genannten Probleme stützt man sich vor allem auf die bereits relativ gut entwickelte Nichtlineare Mechanik, den Einsatz von Digital- und Analogrechnern und die durch die rasche Entwicklung der Raumfahrt geförderten Fortschritte der Nichtlinearen Regelungstechnik. Manche dieser theoretischen Betrachtungen über das dynamische Verhalten von chemischen Reaktoren basieren jedoch auf stark vereinfachten, oft unrealistischen Modellgleichungen, und es fehlt bis heute eine Bestätigung der vorliegenden theoretischen Resultate durch die Praxis. Selbst die Theorie, welche erfahrungsgemäß der Praxis oft vorauseilt, sucht gegenwärtig noch nach geeigneten Methoden zur Behandlung der instationären Modellgleichungen. Auch für die Ermittlung optimaler Zustands-

änderungen eines Systems hinsichtlich eines bestimmten Kriteriums mangelt es bisher an allgemein wirksamen Verfahren.

In dieser Arbeit wird daher versucht, für einen kontinuierlich betriebenen Rührkesselreaktor folgende, allgemein interessierende Fragen zu erörtern:

- 1) Welcher mathematische Aufwand ist für eine Modellerstellung zur hinreichend genauen Beschreibung des dynamischen Verhaltens eines kontinuierlich betriebenen Reaktors erforderlich?
- 2) Welche Schwierigkeiten, die sich z.B. aus der besonderen Form der Nichtlinearität ergeben können, treten bei der theoretischen Behandlung dieser Modellgleichungen auf, wenn man den Reaktor beispielsweise zeitoptimal von einem Zustand in einen anderen überführen will?
- 3) Lassen sich die gewonnenen, theoretischen Ergebnisse experimentell realisieren, und wie gut stimmt das theoretisch vorhergesagte mit dem tatsächlichen dynamischen Verhalten überein?

Zur Beantwortung dieser Fragen wurden zwei für den Laborbetrieb geeignete Rührkesselreaktoren entworfen und gebaut. Der eine ist mit einer elektrischen Heizung ausgestattet und daher relativ leicht mathematisch zu beschreiben (konzentrierte Parameter). Der andere besitzt eine eingebaute Schlange, die von einem Heiz- bzw. Kühlmedium durchflossen wird, und entspricht somit einer in der Praxis üblichen Konstruktion (verteilte Parameter).

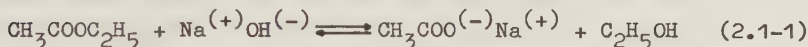
Das Ziel der Untersuchungen ist die Ermittlung der zeitoptimalen Steuerung der Heizung, die es ermöglicht, den Rührkessel von einem stationären Betriebspunkt in einen anderen in der kürzesten überhaupt möglichen Zeit zu überführen. Probleme dieser Art treten in der Praxis z.B. beim An- und Abfahren kontinuierlich betriebener Anlagen, bei der programm-

gesteuerten Herstellung von Farbstoffen und Dispersionen im diskontinuierlichen Verfahren und bei einer nichtlinearen Regelung von Reaktoren auf. Auch die zeitoptimale Analyse mit Hilfe eines Gaschromatographen gehört zu diesem Problemkreis.

## 2. Entwurf und Beschreibung der Versuchsanordnung

### 2.1 Modellreaktion

Für die kontinuierlich betriebenen Rührkesselreaktoren wurde als Modellreaktion die alkalische Verseifung von Äthylacetat mit Natronlauge ausgewählt:



Folgende Gründe sind für diese Auswahl zu nennen:

- 1) Die Reaktion ist homogen und verläuft in wässriger Lösung. Es genügt daher, im Gegensatz zu heterogenen Reaktionen, ein einziger Satz von Bilanzgleichungen, um sie zu beschreiben. Da die Reaktanden 0,04 normal angesetzt werden, können Dichteänderungen des Reaktionsgemisches infolge der sich während der Reaktion ändernden Zusammensetzung vernachlässigt werden.
- 2) Die Reaktion ist von mehreren Autoren bereits untersucht worden, so daß das kinetische Modell als bekannt vorausgesetzt werden kann. Bei allen Untersuchungen [ 12 ] wurde gefunden, daß sich die Reaktionsgeschwindigkeit für äquimolare Ausgangsmengen durch ein Gesetz 2. Ordnung

$$r = - \frac{dc}{dt} = k_2 c^2 \quad (2.1-2)$$

mit

$$k_2 = k_{20} e^{-E/RT} \quad (2.1-3)$$

beschreiben läßt<sup>1)</sup>. TOMMILA et al. [13] geben für den Stoßfaktor  $k_0 = 2,5 \cdot 10^7 \text{ l mol}^{-1} \text{ sec}^{-1}$  und für die Aktivierungsenergie  $E = 11,4 \cdot 10^3 \text{ cal mol}^{-1} \text{ an}^2$ ). Die Reaktionsenthalpie wird in der Literatur [14] mit  $(-\Delta H_R) = 0,61 \cdot 10^{-3} \text{ cal mol}^{-1}$  angegeben, d.h. die Reaktion verläuft praktisch ohne Wärmetönung.

- 3) Der Reaktionsablauf läßt sich mit Hilfe einer Leitfähigkeitsmessung [15] unmittelbar in der Reaktionsmasse verfolgen; es müssen also für die Analyse keine Proben gezogen werden. (Einzelheiten über diese Leitfähigkeitsmessung findet man im Abschnitt A.1.1.)
- 4) Der Reaktionsablauf kann bei Temperaturen von 20 bis 90 °C (Grenztemperaturen eines mit Wasser gefüllten Thermostaten) mit einem verfügbaren Kompensationsschreiber mit einer Einstellzeit von 1 sec aufgezeichnet werden, da auch im ungünstigsten Fall die Zeitkonstante des Schreibers klein gegen die sich ändernde Zeitkonstante der Reaktion ist. (Die Zeitkonstante der Reaktion wird im Abschnitt A.1.2 abgeschätzt.)
- 5) Die Temperaturabhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit ist so groß, daß ein kontinuierlich betriebener Rührkesselreaktor mit Verweilzeiten von 100 bis 1000 sec (diese Grenzen sind durch die zur Verfügung stehende Fallhöhe von etwa 2 m, das verfügbare Regelventil mit einem  $c_v$ -Wert von 0,0165 und das Reaktorvolumen festgelegt) bei Temperaturänderungen des Reaktionsgemisches von 20 bis 90 °C

- 
- 1) Die Bedeutung der Symbole entnehme man dem Symbolverzeichnis.
  - 2) Später werden diese Werte noch durch die Auswertung weiterer Literaturangaben und eigener Kontrollmessungen leicht modifiziert.

(vgl. Punkt 4)) auch merkliche Konzentrationsänderungen aufweist. Diesen Sachverhalt zeigt die Abb. 2.1-I, die mit den unter Punkt 2) genannten kinetischen Daten berechnet wurde.

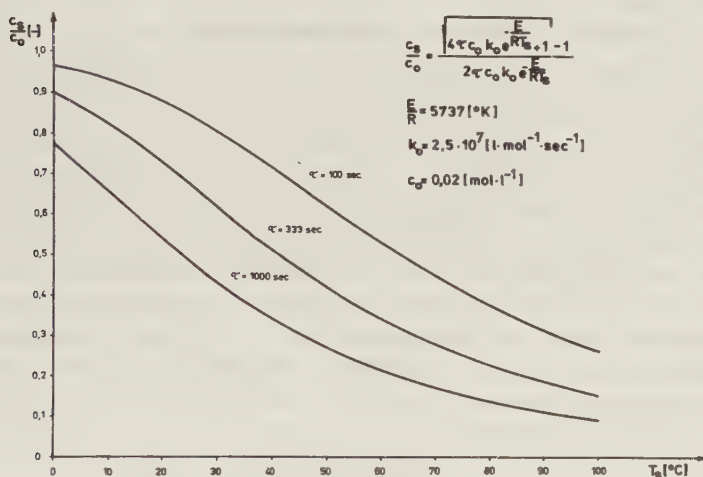


Abb. 2.1-I Konzentrationsabhängigkeit der Kesselkonzentration von der Kesseltemperatur bei stationärer Betriebsweise.

- 6) Die eventuell durch den Rührer eingeschlagene Luft und der wegen seiner guten Wärmeleitung gewählte Heizspiralenwerkstoff V2A ( $\lambda_{V2A} \approx 15 \text{ kcal m}^{-1} \text{ h}^{-1} \text{ }^{\circ}\text{K}^{-1}$  gegen  $\lambda_{GLAS} \approx 1,2 \text{ kcal m}^{-1} \text{ h}^{-1} \text{ }^{\circ}\text{K}^{-1}$ ) beeinflussen nicht den Reaktionsablauf.
- 7) Die bereits in der Zuflußleitung auftretende neutrale Hydrolyse verläuft sehr langsam [12] und ist gegenüber der alkalischen Verseifung zu vernachlässigen. Ebenso stört die durch den Einfall von Licht und den Kontakt mit Glas bedingte Vorverseifung nicht. Auch die begrenzte Mischbarkeit des Äthylacetats mit Wasser (100 Volumenteile

Wasser lösen bei 15 °C 8,5 Volumenteile Äthylacetat [16]) ist bei der vorliegenden maximalen Konzentration (0,04n) irrelevant.

## 2.2 Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor

Die Abb. 2.2-I zeigt den elektrisch beheizten Rührkesselreaktor. Der Kessel und der Deckel bestehen aus Glas. Die beiden Reaktanden werden durch die PVC-Leitungen 1 und 2 bzw. durch die sich anschließenden Kapillarröhrchen dem Reaktor zugeführt und fließen zusammen mit dem Reaktionsprodukt über das in den Boden eingeschmolzene Überlaufrohr aus Glas 3 ab. Auf den Pertinaxkäfig 4 ist der Heizdraht 5 aufgewickelt. Das Rührerblatt 6 und der Rührerschaft 7 bestehen ebenfalls aus Pertinax. Der ganze Rührkesselreaktor ist durch einen selbst-aufschäumenden Zweikomponenten-Hartschaum 8 isoliert. (Weitere Einzelheiten über den elektrisch beheizten Rührkesselreaktor findet man im Abschnitt A.1.3.)

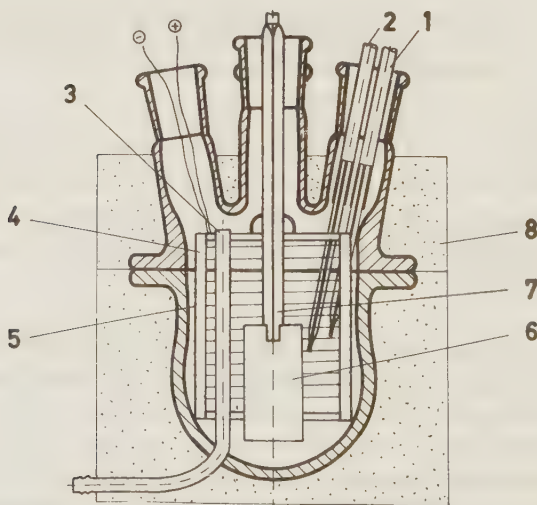


Abb. 2.2-I Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor.

### 2.3 Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor

In der Abb. 2.3-I ist der warmwasserbeheizte Rührkesselreaktor dargestellt. Der Kessel besteht aus V2A-Stahl, der Deckel dagegen aus Glas. Durch die beiden PVC-Schläuche 1 und 2 bzw. durch die sich anschließenden Kapillarröhrchen werden die Reaktanden dem Reaktor zugeführt und verlassen zusammen mit dem Reaktionsprodukt den Reaktor durch das V2A-Überlaufrohr 3. Durch die V2A-Heizschlange fließt heißes Wasser und beheizt indirekt das Reaktionsgemisch. Um eine angenähert adiabatische Arbeitsweise des Reaktors sicherzustellen, ist der gesamte Rührkesselreaktor mit der Kunststoffwatte 5 isoliert. (Weitere Einzelheiten findet man im Abschnitt A.1.3.)

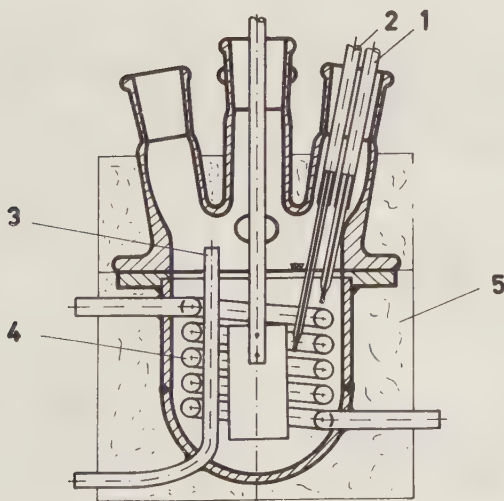


Abb. 2.3-I Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor.

## 2.4 Gesamte Versuchsanordnung für die Esterverseifung

Die Abb. 2.4-I zeigt den gesamten Versuchsaufbau zum Studium des dynamischen Verhaltens von kontinuierlich betriebenen Rührkesselreaktoren. Die beiden Reaktanden Äthylacetat und Natronlauge befinden sich in den 5l-Abklärflaschen mit Bodentubus 1 und 2, die als Vorratsgefäße dienen. Die Schlauchpumpe 3 (Typ LP-A der Fa. Heidolph, Rust) fördert die beiden Flüssigkeiten zu den beiden Überlaufgefäßen 4 und 5. Diese Überlaufgefäße stehen mit der Atmosphäre nur durch jeweils ein Röhrchen von 1,5 mm Innendurchmesser in Verbindung, das etwa 5 mm über dem Flüssigkeitsspiegel von konzentrierter Äthylacetat- bzw. NaOH-Lösung in dem 100 ml-Rundkolben 6 bzw. 7 endet. Dadurch wird verhindert, daß der mitangesaugte Luftstrom im Rückfluß der Überlaufgefäße das Äthylacetat aus der wässrigen Lösung strippt.

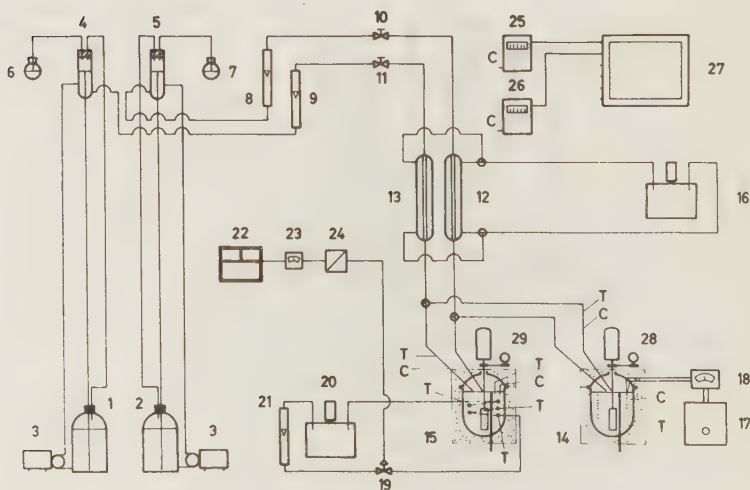


Abb. 2.4-I Gesamter Versuchsaufbau für die Esterverseifung.

Von den Überlaufgefäßen fließen die Reaktanden durch die Abflußleitungen zu den Schwebekörper-Durchflußmessern 8 und 9 (Typ LP 6,3/250 der Fa. Rota Apparate- und Maschinenbau, Oeflingen) und von hier zu den Durchflußnadelventilen 10 und 11 (Typ ELF 8502 der Fa. Brooks, Veenendaal, Holland). Die Stellschraube für den Hub dieser Ventile hat 10 Gewindengänge und gestattet somit eine 1% genaue Regulierung der Durchflußmengen. Anschließend durchströmen die Reaktanden die Wärmeaustauscher 12 und 13 (zwei gläserne Intensivkühler von 3,5 cm Außendurchmesser und 21 cm Länge), wo sie auf die gewünschte Zulauftemperatur gebracht werden, und gelangen dann entweder in den elektrisch beheizten Rührkesselreaktor 14 oder in den mit warmem Wasser beheizten Rührkesselreaktor 15. Der Thermostat 16 (Typ NBE der Fa. Haake, Berlin) erhitzt und fördert die Wassermenge, welche in den Wärmeaustauschern 12 und 13 die Reaktanden im Gleichstromverfahren<sup>1)</sup> aufheizen.

Am Spartransformator 17 (Typ RTK der Fa. Ruhstrat, Lengler) kann man die zur Beheizung des Reaktors 14 gewünschte elektrische Energie einstellen und mit Hilfe des Wattmeters 18 (Typ Praezision-Zeigerleistungsmesser Klasse 0,2 der Fa. Siemens, Karlsruhe) messen. Die Wärmezufuhr des Reaktors 15 wird mit dem pneumatischen Regelventil 19 (Typ 1000 4-a der Fa. VIA, Düsseldorf) gesteuert, indem man die umlaufende Menge des Heizmediums variiert. Der Thermostat 20 (Typ NBD8/17 der Fa. Lauda, Lauda) erhitzt und fördert das Heizmedium. Am Schwebekörper-Durchflußmesser 21 (Typ LP 6,3/250 der Fa. Rota Apparate- und Maschinenbau, Oeflingen) wird die Durchflußmenge abgelesen.

Für die Erzeugung eines eingepprägten Gleichstroms von 0 bis 50 mA stehen ein elektrischer Funktionsgenerator (Typ 3300A der Fa. Hewlett u. Packard, Berkeley Heights, N.J., USA) und

---

1) Die Gleichstromschaltung wurde gewählt, da sie weniger empfindlich bezüglich Temperaturschwankungen im Zulauf der zu erwärmenden Komponente ist.

zwei elektrische Geräte 22 zur Verfügung, die sowohl als Netzteil als auch als Verstärker geschaltet werden können (Typ 6823A der Fa. Hewlett u. Packard, Berkeley Heights, N.J., USA). Dieser Strom wird mit dem Amperemeter 23 (Typ Multizet der Fa. Siemens, Karlsruhe) gemessen und in dem elektropneumatischen Umsetzer 24 (Typ Teleperm - Telepneu der Fa. Siemens, Karlsruhe) in einen proportionalen Luftdruck zwischen 0,2 und 1,0 kp/cm<sup>2</sup> umgeformt.

An den Stellen der Abb. 2.4-I, die durch ein T oder ein C gekennzeichnet sind, wird die Temperatur bzw. die Konzentration eines Stoffes gemessen. Die Temperaturen werden mit Hilfe von korrosionsbeständigen Ni-CrNi-Thermoelementen (Typ Thermo-coax der Fa. Philips, Hamburg) ermittelt. Die Konzentrationen werden durch Leitfähigkeitsmessungen mit selbstgebaute oder serienmäßigen Meßzellen (Typ PR 9510 der Fa. Philips, Hamburg), deren Elektroden aus Platin-Silber-Legierungen bestehen, und den beiden Leitfähigkeitsmeßbrücken 25 und 26 (Typ PR 9501 der Fa. Philips, Hamburg) bestimmt. Die wesentlichen Meßgrößen werden von dem 6-Kanallinienschreiber 27 (Typ Multi-Pen Recorder B-64/S der Fa. Hellige, Freiburg) geschrieben. Mit den Wirbelstrom-Tachometern 28 bzw. 29 (Typ JFG 60 der Fa. VDO, Frankfurt) werden die Umdrehungen des Reaktorührers gemessen.

### 3. Modellgleichungen der Rührkesselreaktoren

In diesem Abschnitt sollen zunächst die Modellgleichungen für den elektrisch beheizten Reaktor und anschließend die für den warmwasserbeheizten Reaktor aufgestellt und überprüft werden.

#### 3.1 Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor

##### 3.1.1 Erstellung der Modellgleichungen

Setzt man voraus, daß der elektrisch beheizte Rührkesselreaktor ideal durchmischt ist und die Wärmekapazität der Reaktorwand zu vernachlässigen ist, dann lauten für äquimolaren Zu- und Abfluß und eine Reaktion 2. Ordnung die über die Reaktionsgeschwindigkeit gekoppelte Material- und Energiebilanz<sup>1)</sup>

$$V \frac{dc}{dt} = q(c_0 - c) - V r \quad (3.1-1)$$

$$V \rho c_p \frac{dT}{dt} = q \rho c_p (T_0 - T) + (-\Delta H_R) V r + N \quad (3.1-2)$$

mit

$$r = k_0 e^{-E/RT} c^2 \quad (3.1-3)$$

Hierbei steht  $N \text{ [kcal h}^{-1}\text{]}$  für die der Heizwicklung zugeführte elektrische Energie.

---

1) Die Bedeutung der Symbole entnehme man dem Symbolverzeichnis.

Berücksichtigt man die Wärmekapazität der Reaktorwand, indem man annimmt, daß der Wärmeübergang auf der Innenseite der Reaktorwand perfekt ist ( $\alpha_i = \infty$ ) und der Wärmeübergang auf der Außenseite der Reaktorwand zu vernachlässigen ist ( $\alpha_a = 0$ ), dann muß Gleichung (3.1-2) zu

$$(V_W \rho_W c_{pW} + V \rho c_p) \frac{dT}{dt} = q \rho c_p (T_0 - T) + (-\Delta H_R) V r + N \quad (3.1-4)$$

modifiziert werden. Die mit dem Buchstaben W indizierten Größen beziehen sich auf die Wand des Reaktors.

Die Zulässigkeit der getroffenen Annahmen für die Erstellung der Modellgleichung (3.1-4) muß durch das Experiment bestätigt werden, d.h. das aufgrund dieser Modellgleichung vorhergesagte Verhalten (Simulation) muß mit dem experimentell bestimmten Verhalten hinreichend genau übereinstimmen, damit die in der Modellgleichung implizierten Annahmen als zulässig angesehen werden können.

### 3.1.2 Bestimmung der unbekannten Parameter

#### 3.1.2.1 Aktivierungsenergie und Stoßfaktor

Zur Kontrolle der in [13] angegebenen Werte für die Aktivierungsenergie und den Stoßfaktor werden neuere Literaturangaben hinzugezogen und eigene Messungen angestellt.

ANANTAKRISHNAN et al. [21] geben aufgrund von Messungen bei 30,35 und 40 °C eine Aktivierungsenergie von  $E = 10,53 \text{ kcal mol}^{-1}$  und einen Stoßfaktor von  $k_0 = 5,64 \cdot 10^6 \text{ l mol}^{-1} \text{ sec}^{-1}$  an. Die in dieser Arbeit für die genannten Temperaturen aufgeführten Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten werden in die weiter unten beschriebene Regression und Korrelation mit einbezogen.

Zur Bestimmung der Aktivierungsenergie und des Stoßfaktors werden ferner die Ergebnisse einer bisher nicht veröffentlichten Untersuchung [ 22 ] dieser Größen verwendet.

Die eigenen Messungen werden bei verschiedenen Temperaturen im Bereich von 20 bis 80 °C in einem thermostatisierten, gut durchmischten 500 ml Weithalsreaktionskolben mit Planschliffdeckel (Typ FR 500 F der Fa. Quickfit, Wiesbaden) isotherm durchgeführt. Die zugehörigen Meßschriebe für die Temperatur- und Leitfähigkeitsverläufe sind im ITCI<sup>1)</sup> deponiert.

In der Tabelle 3.1-I sind die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten  $k$  und die zugehörigen Temperaturen  $T$  zusammengestellt, die mit Hilfe des Rechenprogramms LINREG [ 23 ] einer linearen Regression unterzogen werden. Dabei ergibt sich für die Aktivierungsenergie  $E = 11,0 \text{ kcal mol}^{-1}$  und für den Stoßfaktor  $k_0 = 1,368 \cdot 10^7 \text{ l mol}^{-1} \text{ sec}^{-1}$ . Die Abb. 3.1-I zeigt die einzelnen Meßwerte und die zugehörige Regressionsgerade. In der Abb. 3.1-II sind für diese Werte die korrigierten  $c_s/c_o$ -Verläufe über der Temperatur  $T$  aufgetragen (vgl. Abb. 2.1-I).

### 3.1.2.2 Reaktorvolumen

Für die Bestimmung des Reaktorvolumens wird der elektrisch beheizte Reaktor bei einer Rührerdrehzahl von  $n = 500 \text{ U min}^{-1}$  bis zum Überlauf mit Wasser gefüllt und anschließend, nachdem der Rührmotor abgestellt ist, der Reaktorinhalt abgesaugt und ausgelitert. Als Mittelwert aus 12 Messungen<sup>2)</sup> ergibt sich das Reaktorvolumen zu  $V = 350 \text{ ml}$ .

---

1) ITCI wird auch im weiteren als Abkürzung für Institut für Technische Chemie, Lehrstuhl I, Universität Erlangen-Nürnberg, verwendet.

2) Die Meßergebnisse sind im ITCI deponiert.

| $k \left[ \text{l mol}^{-1} \text{sec}^{-1} \right]$ | $T \left[ ^\circ \text{C} \right]$ | Zitat          | Symbol |
|------------------------------------------------------|------------------------------------|----------------|--------|
| 0,1617                                               | 30,0                               | [21]           | □      |
| 0,1862                                               | 35,0                               | [21]           | □      |
| 0,2817                                               | 40,0                               | [21]           | □      |
| 0,095                                                | 19,4                               | [22]           | ○      |
| 0,105                                                | 25,3                               | [22]           | ○      |
| 0,200                                                | 35,4                               | [22]           | ○      |
| 0,305                                                | 42,8                               | [22]           | ○      |
| 0,830                                                | 63,5                               | [22]           | ○      |
| 0,12                                                 | 21,0                               | eigene Messung | △      |
| 0,25                                                 | 36,0                               | eigene Messung | △      |
| 0,33                                                 | 45,0                               | eigene Messung | △      |
| 0,50                                                 | 50,0                               | eigene Messung | △      |
| 1,04                                                 | 60,0                               | eigene Messung | △      |
| 1,25                                                 | 68,0                               | eigene Messung | △      |
| 1,53                                                 | 69,0                               | eigene Messung | △      |
| 1,55                                                 | 74,0                               | eigene Messung | △      |
| 2,0                                                  | 77,0                               | eigene Messung | △      |

Tabelle 3.1-I: Gemessene Temperaturabhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten für die alkalische Esterverseifung.

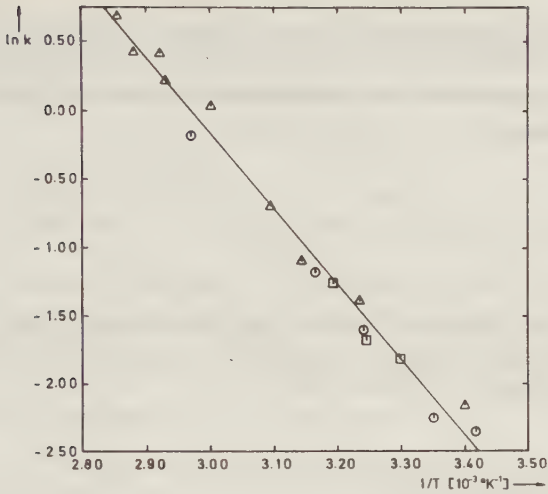


Abb. 3.1-I Bestimmung der Aktivierungsenergie und des Stoßfaktors für die alkalische Esterverseifung. (Symbolerklärung vgl. Tabelle 3.1-I, S. 16)

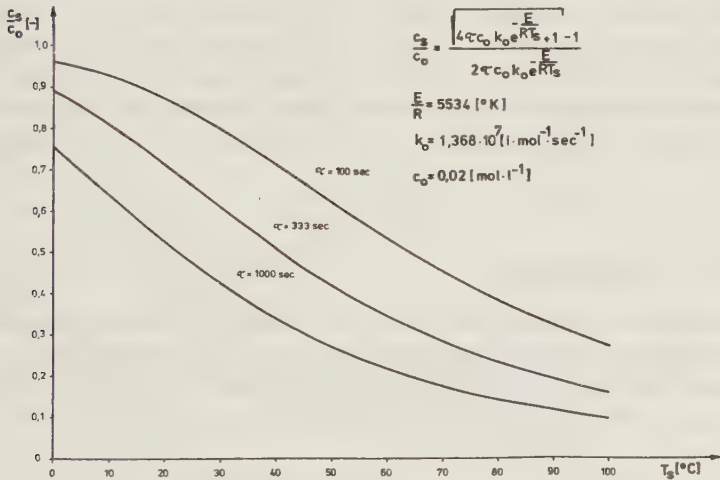


Abb. 3.1-II Abhängigkeit der Kesselkonzentration von der Kesseltemperatur bei stationärer Betriebsweise.

### 3.1.2.3 Wärmekapazität der Reaktorwand

Zur Berücksichtigung der Wärmekapazität der Reaktorwand wird die Gleichung (3.1-4) auf die Form

$$\left( \frac{V_W \rho_W c_{pW}}{\rho c_p} \rho c_p + V \rho c_p \right) \frac{dT}{dt} = q \rho c_p (T_o - T) + (-\Delta H_R) V r + N \quad (3.1-5)$$

gebracht und somit der Wandeinfluß hinsichtlich der Wärmebilanz als zusätzliches "thermisch wirksames Reaktorvolumen" interpretiert:

$$\Delta V = \frac{V_W \rho_W c_{pW}}{\rho c_p} = \frac{M_W c_{pW}}{\rho c_p} \quad (3.1-6)$$

Hierbei bedeutet  $M_W$  die Masse der energiespeichernden Reaktorwand. Es wird angenommen, daß der gesamte Reaktorkolben und 50% des Deckels als Energiespeicher in Frage kommen. Da Kolben und Deckel jeweils 0,25 kp wiegen, ergibt sich  $M_W = 0,375$  kg. Mit der spezifischen Wärme  $c_{pW} = 0,2$  kcal kg<sup>-1</sup> °C<sup>-1</sup> für Glas und  $\rho c_p = 1$  kcal l<sup>-1</sup> °C<sup>-1</sup> für Wasser wird  $\Delta V = 75$  ml. Die energiespeichernde Reaktorwand wirkt also unter den getroffenen Annahmen so, als sei das "Reaktorvolumen" um 21,4% vergrößert.

### 3.1.2.4 Adiabasie

Vernachlässigt man bei einem stationären, adiabatischen Betrieb des Reaktors den Reaktionsterm in der Wärmebilanz (sein Beitrag liegt im Bereich von 20 bis 100 °C für  $\tau = 333$  sec immer unter  $1,0 \cdot 10^{-2}$  °C), dann wird aus Gleichung (3.1-4)

$$T - T_o = \Delta T = \frac{1}{q \rho c_p} N \quad (3.1-7)$$

Diese Gleichung wird zur Kontrolle der Adiabasie verwendet. Für  $q = 3,78 \text{ l h}^{-1}$  ( $\tau = 333 \text{ sec}$ ) und  $g_{c_p} = 1 \text{ kcal l}^{-1} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$  ergibt sich folgender theoretischer Zusammenhang

$$\Delta T [^{\circ}\text{C}] = 0,2275 \cdot N [\text{W}] \quad (3.1-8)$$

Den experimentell ermittelten Zusammenhang zeigt die Kennlinie der Abb. 3.1-III. Man entnimmt der Abb. 3.1-III eine Steigung von  $0,22 \text{ }^{\circ}\text{C W}^{-1}$ , d.h. die bei der Aufstellung der Modellgleichungen (3.1-2) bzw. (3.1-4) vorausgesetzte Adiabasie gilt im Rahmen der Meßgenauigkeit als gesichert.

Der von Null verschiedene Ordinatenabschnitt der Kennlinie in der Abb. 3.1-III ist auf die durch das Rühren zugeführte Energie zurückzuführen.

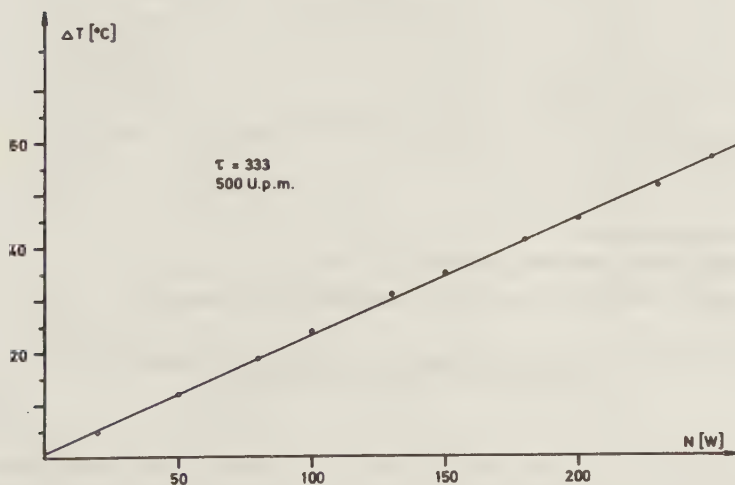
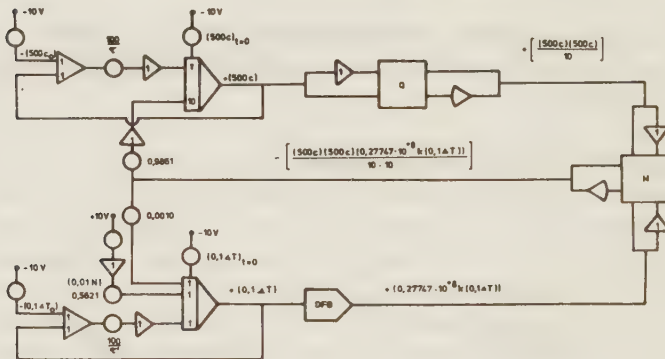


Abb. 3.1-III Kesseltemperaturerhöhung in Abhängigkeit von der zugeführten elektrischen Heizung.

### 3.1.3 Experimentelle Überprüfung der Modellgleichungen

Zur Überprüfung der Modellgleichungen (3.1-1) und (3.1-4) werden diese Gleichungen auf einem Analogrechner (Typ PACE TR 48 der Fa. EAI, Long Branch, N.J., USA) verschaltet. Die Abb. 3.1-IV zeigt die Rechenschaltung und die Maschinengleichungen. Mit Hilfe des Analogrechners werden einzelne Übergangsfunktionen des Reaktors simuliert und somit optisch, anschaulich ein Vergleich mit experimentell bestimmten Übergangsfunktionen ermöglicht. Wegen der geringen Reaktionsenthalpie von  $(-\Delta H_R) = 0,61 \text{ kcal mol}^{-1}$  genügt es hier, nur die Temperaturverläufe zu vergleichen.



#### Maschinengleichungen:

$$\frac{d(500c)}{d(10^{-2}t)} = \frac{100}{\tau} [(500c_s) - (500c)] - 0,861 \left[ \frac{(500c)(500c)(0,27747 \cdot 10^{-8} k(0,1 \Delta T))}{10 \cdot 10} \right]$$

$$\frac{d(0,1 \Delta T)}{d(10^{-2}t)} = \frac{100}{\tau} [(0,1 \Delta T_s) - (0,1 \Delta T)] + 9,9 \cdot 10^{-4} \left[ \frac{(500c)(500c)(0,27747 \cdot 10^{-8} k(0,1 \Delta T))}{10 \cdot 10} \right] + 0,5621 (0,01 N)$$

Abb. 3.1-IV Rechenschaltung der Modellgleichungen für den elektrisch beheizten Rührkessel.

Die Abb. 3.1-V zeigt die im Experiment ermittelte Sprungantwort der Kesseltemperatur T auf eine Änderung der Heizleistung von  $N = 20 \text{ W}$  auf  $N = 130 \text{ W}$ .

Die Abb. 3.1-VI stellt die Simulation der entsprechenden Sprungantwort der Kesseltemperatur T dar. Der gemessene und

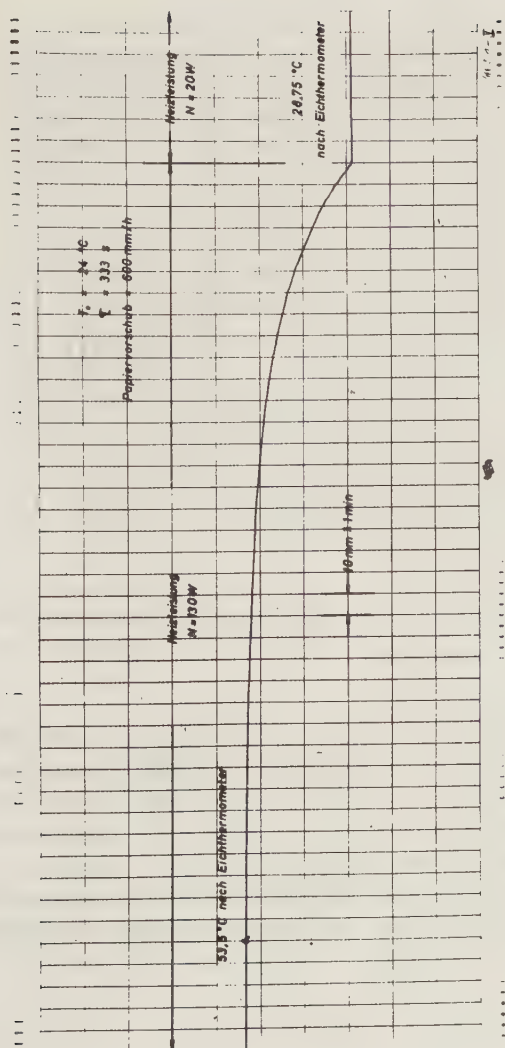


Abb. 3.1-V Experimentelle Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333 \text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 20 W auf 130 W.

der gerechnete Temperaturverlauf stimmen im Rahmen der Meß-, Rechen- und Zeichengenauigkeit so gut überein, daß die Kurven als deckungsgleich angesehen werden können.

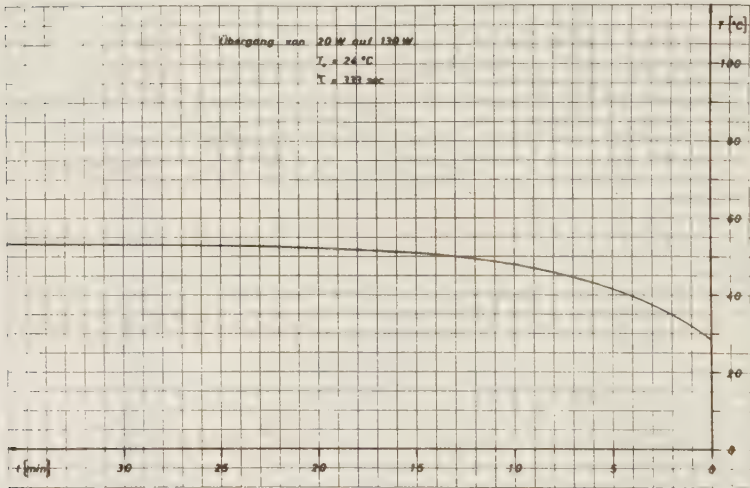


Abb. 3.1-VI Simulierte Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333\text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 20 W auf 130 W.

Die Abbildungen 3.1-VII, 3.1-VIII und 3.1-IX zeigen die experimentell bestimmten Übergangsfunktionen der Kesseltemperatur  $T$  für Änderungen der Heizleistung  $N$  von 20 auf 240 W, von 240 auf 130 W und von 240 auf 20 W für  $\tau = 333\text{ sec}$ . Die entsprechenden Simulationen sind in den Abbildungen 3.1-X, 3.1-XI und 3.1-XII dargestellt. Auch hier darf die Übereinstimmung zwischen den gemessenen und gerechneten Temperaturverläufen als gut bezeichnet werden.

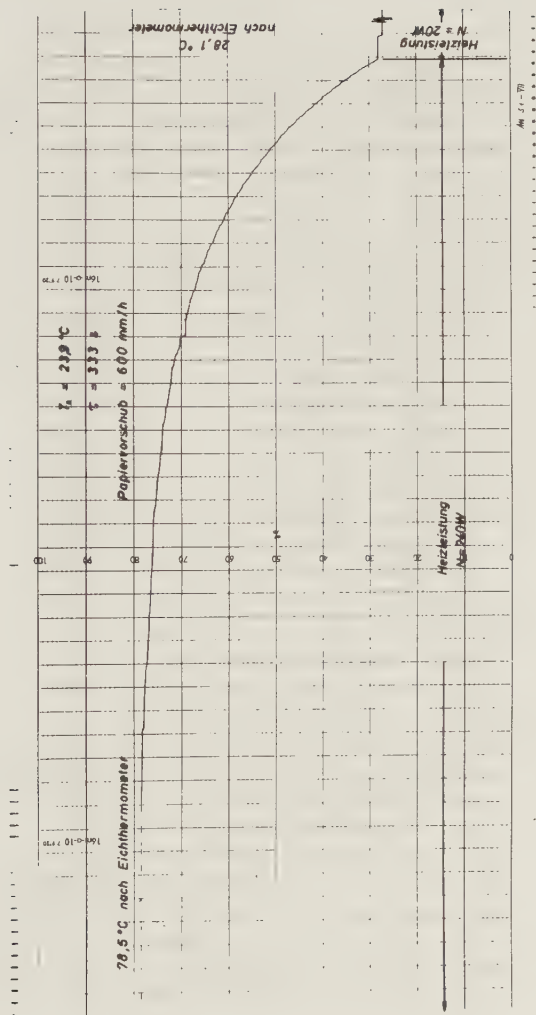


Abb. 3.1-VII Experimentelle Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333 \text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 20 W auf 240 W.

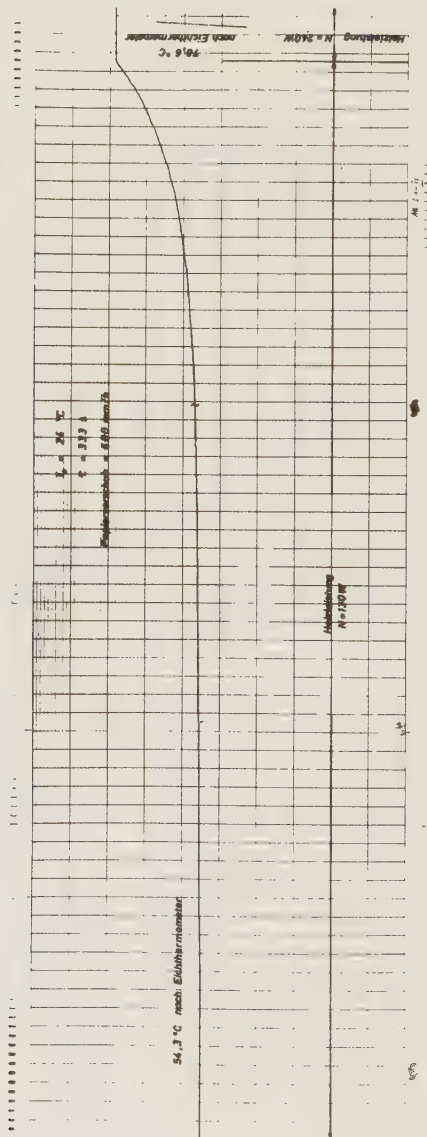


Abb. 3.1-VIII Experimentelle Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333$  sec für eine Heizleistungsänderung von 240 W auf 130 W.

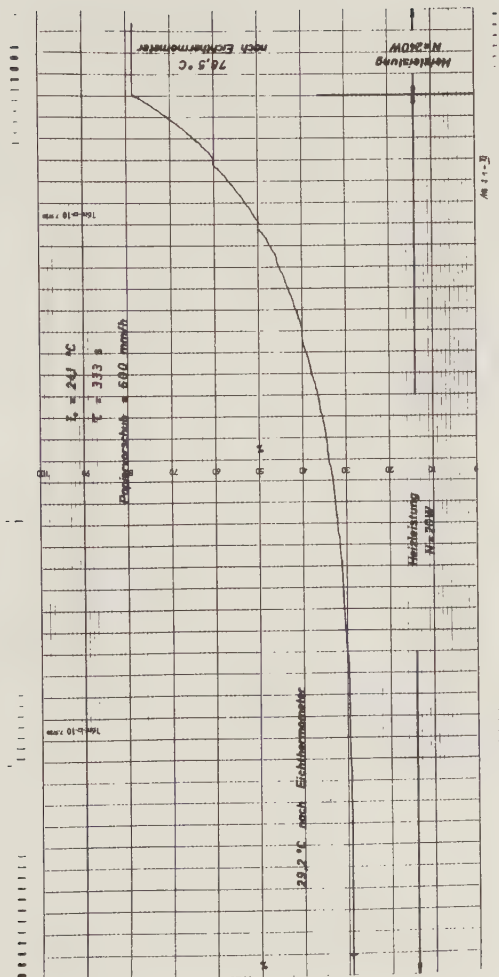


Abb. 3.1-IX Experimentelle Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333$  sec für eine Heizleistungsänderung von 240 W auf 20 W.

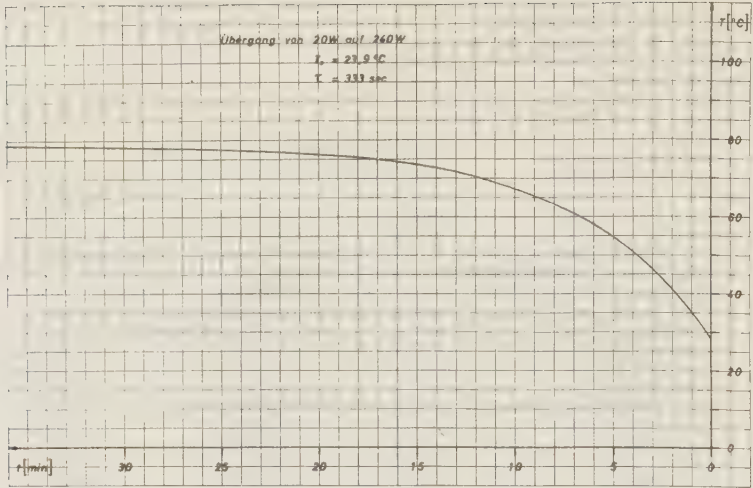


Abb. 3.1-X Simulierte Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333\text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 20 W auf 240 W.

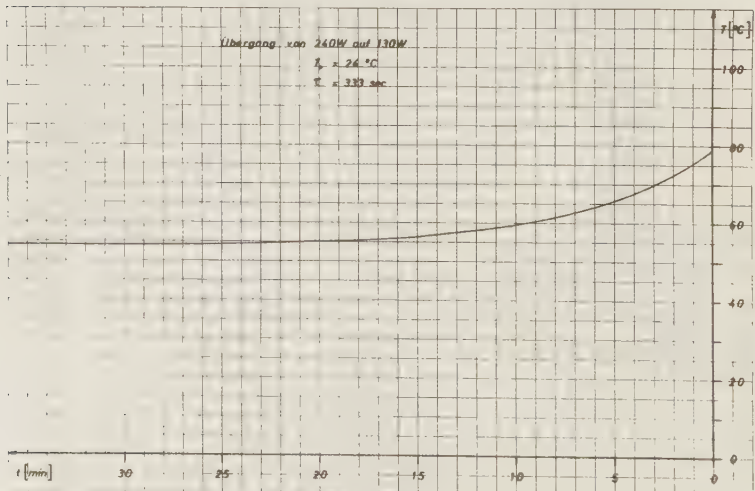


Abb. 3.1-XI Simulierte Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333\text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 240 W auf 130 W.

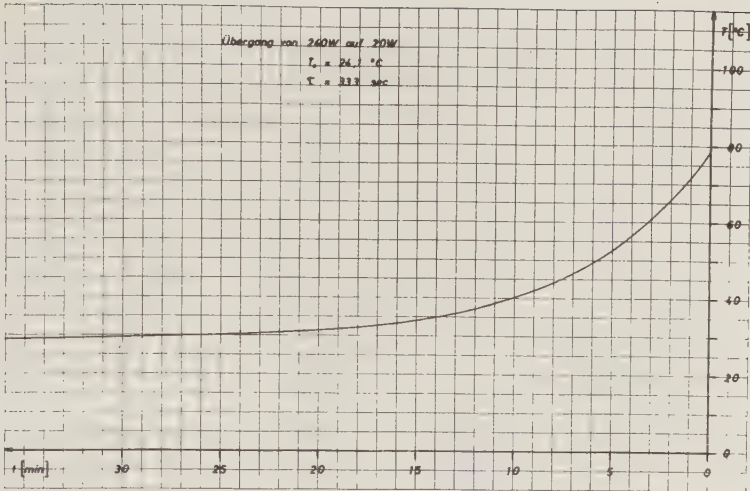


Abb. 3.1-XII Simulierte Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 333 \text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 240 W auf 20 W.

Um sicherzustellen, daß die Modellgleichungen (3.1-1) und (3.1-4) auch für verschiedene Verweilzeiten  $\tau$  innerhalb des vorgesehenen Variablenbereiches das reale Geschehen hinreichend genau beschreiben, werden für  $\tau = 1000 \text{ sec}$  zwei weitere Übergangsfunktionen aufgenommen und mit der entsprechenden Simulation verglichen. Die Abbildungen 3.1-XIII und 3.1-XIV zeigen die gemessenen Sprungantworten der Kesseltemperatur  $T$  für eine Änderung der Heizleistung  $N$  von 10 auf 50 W bzw. 90 auf 50 W. Die entsprechenden Simulationen sind in den Abbildungen 3.1-XV und 3.1-XVI dargestellt. Man kann auch für diese Verweilzeit von einer guten Übereinstimmung sprechen, da die Kurvenverläufe kaum voneinander abweichen.

Die Modellgleichungen für den elektrisch beheizten Rührkessel (3.1-1) und (3.1-4) beschreiben also das reale Geschehen hinreichend genau.

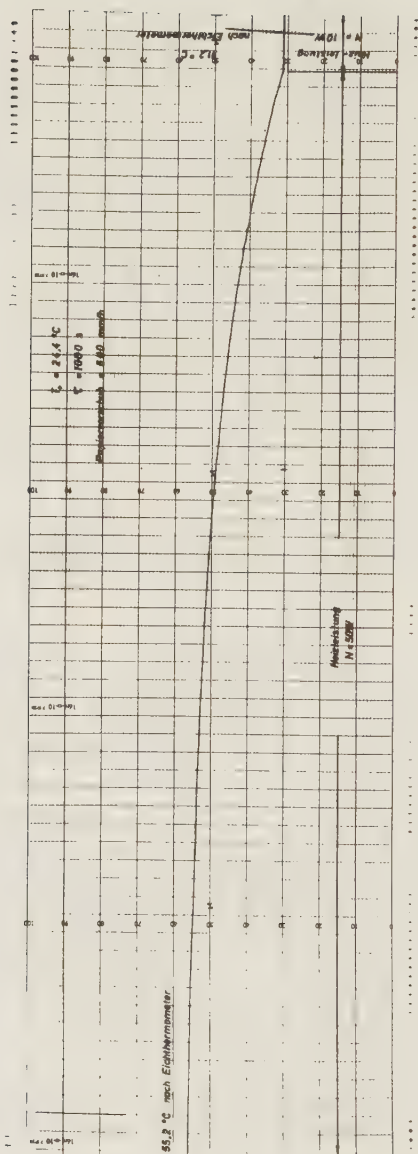


Abb. 3.1-XIII Experimentelle Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 1000 \text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 10 W auf 50 W.

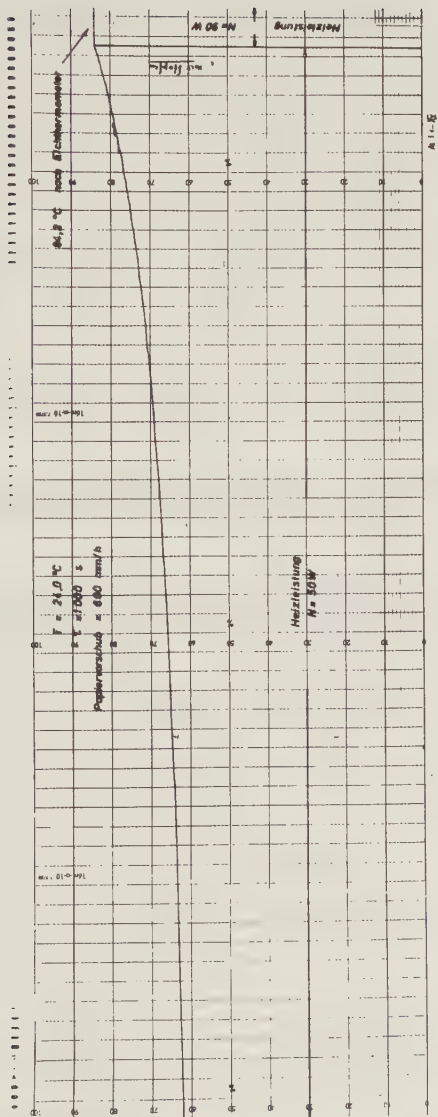


Abb. 3.1-XIV Experimentelle Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 1000 \text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 90 W auf 50 W.

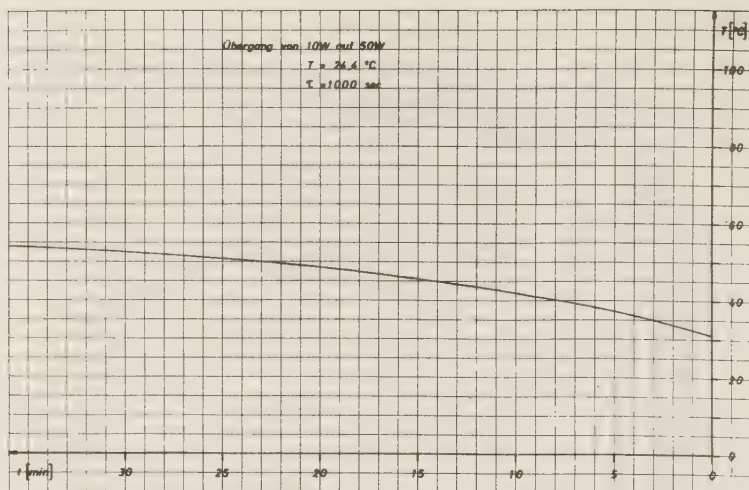


Abb. 3.1-XV Simulierte Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 1000 \text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 10 W auf 50 W.

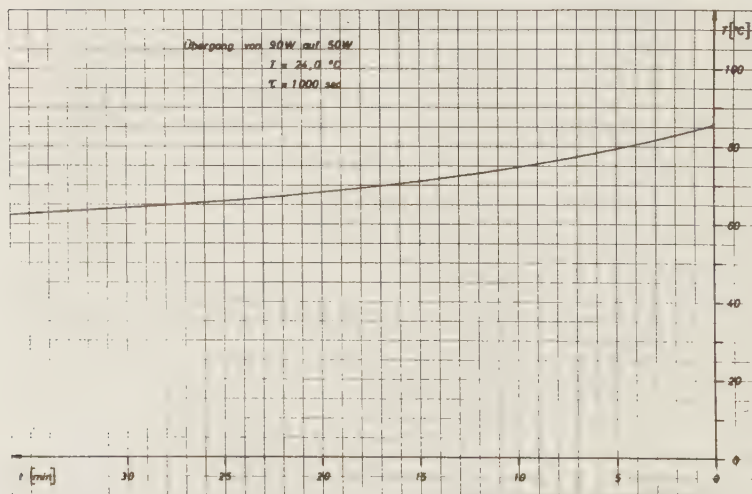


Abb. 3.1-XVI Simulierte Sprungantwort der Kesseltemperatur bei  $\tau = 1000 \text{ sec}$  für eine Heizleistungsänderung von 90 W auf 50 W.

### 3.2 Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor

#### 3.2.1 Erstellung der Modellgleichungen

Setzt man voraus, daß die Wärmekapazität und die Wärmeleitfähigkeit der Reaktorwand und der Heizschlange sowie die Wärmeabgabe des Reaktors an die Umgebung vernachlässigbar sind, dann kann man für den warmwasserbeheizten Rührkesselreaktor folgende Modellgleichungen formulieren (vgl. Abb. 3.2-I):

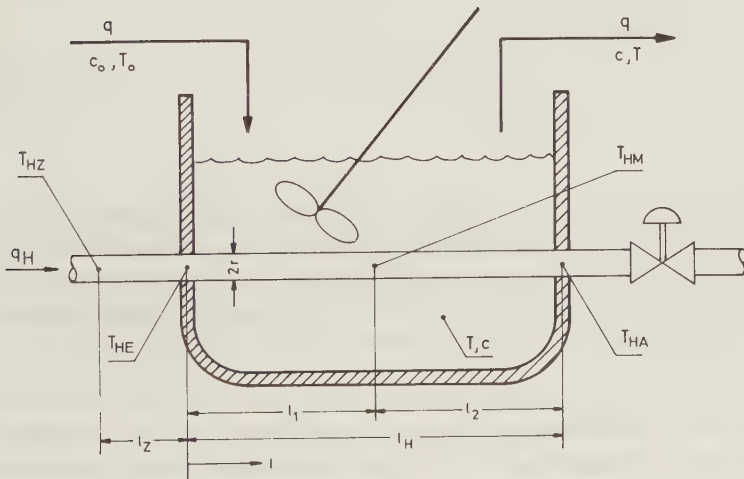


Abb. 3.2-I Vereinfachte Betrachtungsweise für die Heizschlange.

Für die Temperatur  $T_H$  des Heizmediums<sup>1)</sup> gilt bei Pfropfenströmung die partielle Differentialgleichung

1) Der Index H kennzeichnet das Heizmedium, die Bedeutung der übrigen Symbole entnehme man dem Symbolverzeichnis.

$$\pi r_i^2 c_{pH} \vartheta_H \frac{\partial T_H}{\partial t} = - q_H c_{pH} \vartheta_H \frac{\partial T_H}{\partial l} - 2\pi r_i k (T_H - T) \quad (3.2-1)$$

und für den ideal durchmischten Rührkessel lautet die Energiebilanz

$$V \vartheta c_p \frac{dT}{dt} = q \vartheta c_p (T_o - T) + (-\Delta H_R) V r + \int_0^{l_H} 2\pi r_i k (T_H - T) dl \quad (3.2-2)$$

bzw. die Materialbilanz

$$V \frac{dc}{dt} = q (c_o - c) - V r \quad (3.2-3)$$

Diese drei Gleichungen lassen sich für vorgegebene Anfangsbedingungen ( $c(o)$ ,  $T(o)$  und  $T_H(o, l)$ ) bzw. vorgegebene Randbedingung ( $T_H(t, o)$ ) wegen der starken Nichtlinearität von  $r$  und  $q_H$  nicht analytisch lösen. Jedoch kann man mit Hilfe eines Analog- oder eines Digitalrechners eine Näherungslösung ermitteln.

Für eine solche Näherungslösung kann man z.B. die partielle Differentialgleichung (3.2-1) diskretisieren, d.h. durch einen Satz von  $n$  gewöhnlichen Differentialgleichungen ersetzen. Benutzt man für diese Approximation eine äquidistante Unterteilung der Gesamtlänge  $l_H$  und den rückwärtigen Differenzenquotienten, dann ersetzt man das Rohr der Heizschlange durch eine Kaskade gleichen Gesamtvolumens mit gleichgroßen Einzelkesseln und kann schreiben

$$\pi r_i^2 c_{pH} \vartheta_H \frac{l_H}{n} \frac{dT_{H,i}}{dt} = q_H c_{pH} \vartheta_H (T_{H,i-1} - T_{H,i}) - 2\pi r_i k_i \frac{l_H}{n} (T_{H,i} - T) \quad (3.2-4)$$

$$i = 1, 2, \dots, n$$

bzw. aufgelöst und mit Hilfe der Wärmeübertragungsfläche

$$F_i = 2\pi r_i l_H / n$$

$$\frac{dT_{H,i}}{dt} = \frac{q_H n}{\pi r_i^2 l_H} (T_{H,i-1} - T_{H,i}) - \frac{k_i F_i n}{\pi r_i^2 c_{pH} \rho_H l_H} (T_{H,i} - T) \quad 1)$$

$$i = 1, 2, \dots, n \quad (3.2-5)$$

Für die Wärmebilanz des Reaktionsgemisches ergibt sich aufgrund dieser Näherung

$$\frac{dT}{dt} = \frac{q}{V} (T_o - T) + \frac{(-\Delta H_R)}{\rho c_p} r + \frac{1}{V \rho c_p} \sum_{i=1}^n k_i F_i (T_{H,i} - T) \quad (3.2-6)$$

In den Modellgleichungen (3.2-5) und (3.2-6) sind zusätzliche Wärmekapazitäten, wie die der Reaktorwand, der Wand der Heizschlange und der Heizmediumabflußleitung einschließlich Regelventil, nicht berücksichtigt. Die Abb. 3.2-II zeigt das "Blockdiagramm" des Rührkesselreaktors, in welchem diese zusätzlichen Wärmekapazitäten eingezeichnet sind. Nimmt man an, daß sich diese zusätzlichen Wärmekapazitäten in thermischer Hinsicht wie das Reaktionsgemisch selbst verhalten, dann darf man Gl. (3.2-6) durch Einführen des Faktors  $\gamma$  zu

$$\frac{dT}{dt} = \frac{q \gamma}{V} (T_o - T) + \frac{(-\Delta H_R)}{\rho c_p} r + \frac{\gamma}{V \rho c_p} \sum_{i=1}^n k_i F_i (T_{H,i} - T) \quad (3.2-7)$$

- 
- 1) Für  $\frac{k_i F_i n}{\pi r_i^2 c_{pH} \rho_H l_H}$  schreibt man üblicherweise  $\frac{2k_i}{r_i c_p \rho_H}$ , da jedoch  $(k_i F_i)$  hier als ein einziger Parameter aufgefaßt werden soll, wird diese erste Schreibweise gewählt.

korrigieren. In der Abb. 3.2-III ist das dieser Vereinfachung entsprechende "Blockdiagramm" dargestellt. Inwieweit dann die Energiebilanzgleichungen (3.2-5) und (3.2-7) geeignet sind, das reale Geschehen zu beschreiben, müssen Experimente zeigen.

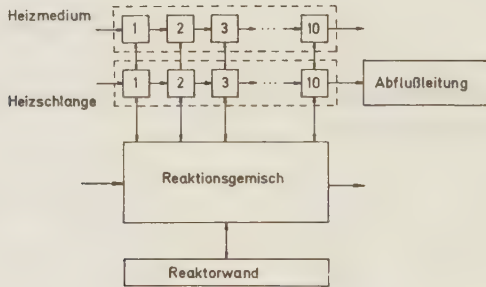


Abb. 3.2-II Schematische Betrachtungsweise des warmwasser-beheizten Rührkesselreaktors.

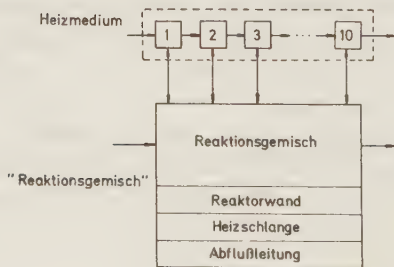


Abb. 3.2-III Vereinfachte schematische Betrachtungsweise des warmwasserbeheizten Rührkesselreaktors.

Die Notwendigkeit bei der Modellierung des Rührkesselreaktors, die genannten zusätzlichen Wärmekapazitäten überhaupt berücksichtigen zu müssen, ist charakteristisch für Laborapparaturen, bei denen das Verhältnis von Wärmekapazität des Reaktionsgemisches zur Wärmekapazität der Reaktorwand und sonstiger Ein- bzw. Ausbauten extrem klein ist im Vergleich zu dem von Apparaturen im Industriemaßstab.

### 3.2.2 Bestimmung der unbekannten Parameter

#### 3.2.2.1 Wärmedurchgangskoeffizient und Heizmediumdurchfluß

Setzt man die Wärmedurchgangszahl  $k$  in Gl. (3.2-1) als konstant längs der Heizschlange voraus, dann gilt für den Wärmedurchgangskoeffizienten<sup>1)</sup>  $k_i F_i$  in Gl. (3.2-5) bzw. (3.2-7):

$$k_i F_i = q \vartheta_p \left( \frac{T - T_o}{T_{HE} - T_{HA}} \right) \left[ \left( \frac{T_{HE} - T}{T_{HA} - T} \right)^{1/n} - 1 \right] \quad (3.2-8)$$

Für die Bestimmung von  $k_i F_i$  benötigt man also die Meßweite  $T_{HE}$ ,  $T_{HA}$ ,  $T_o$ ,  $T$  und  $q$ . Da jedoch bereits in der Zulaufleitung (vgl. Abb. 3.2-I) Wärme an die Wand der Heizschlange übertragen wird und diese Wärme zum größten Teil dem Reaktor zufließt, wird, um dies zu berücksichtigen, in Gl. (3.2-8) für  $T_{HE}$  die Zulauftemperatur  $T_{HZ}$  eingesetzt. Die Zulässigkeit dieser Modifikation wird noch gezeigt.

In den Abbildungen 3.2-IV, 3.2-V, 3.2-VI, 3.2-VII und 3.2-VIII sind  $T$ ,  $T_{HA}$ ,  $T_{HM}$ ,  $T_{HE}$  und  $T_{HZ}$  in Abhängigkeit vom Heizmediumdurchfluß dargestellt. Die quadratischen Ausgleichskurven durch

---

1)  $k_i F_i$  [kcal h<sup>-1</sup> °C<sup>-1</sup>] soll hier und im folgenden als Wärmedurchgangskoeffizient oder einfach als Wärmedurchgang bezeichnet werden. Die Größe  $k_i$  [kcal h<sup>-1</sup> m<sup>-2</sup> °C<sup>-1</sup>] wird im Unterschied dazu Wärmedurchgangszahl genannt.

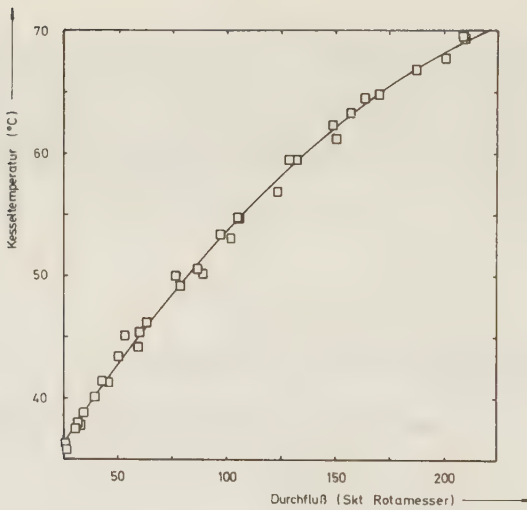


Abb. 3.2-IV Kesseltemperatur in Abhängigkeit vom Heizmediumdurchfluß.

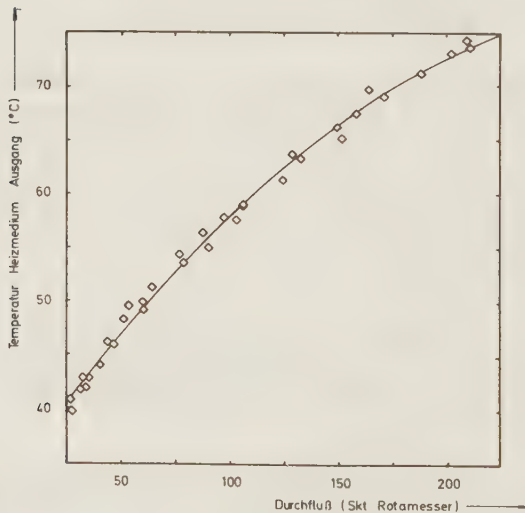


Abb. 3.2-V Temperatur des Heizmediums am Ausgang der Heizschlange in Abhängigkeit vom Heizmediumdurchfluß.

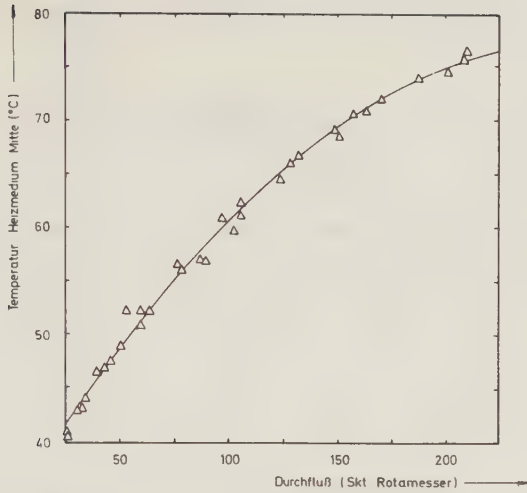


Abb. 3.2-VI Temperatur des Heizmediums in der Mitte der Heizschlange in Abhängigkeit vom Heizmedium-durchfluß.

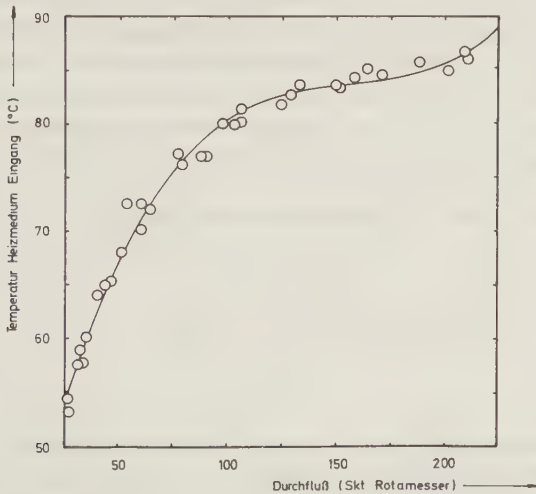


Abb. 3.2-VII Temperatur des Heizmediums am Eingang der Heizschlange in Abhängigkeit vom Heizmedium-durchfluß.

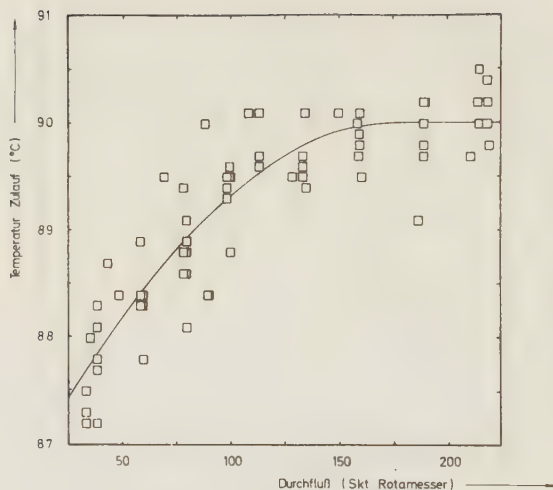


Abb. 3.2-VIII Temperatur des Heizmediums im Zulauf in Abhängigkeit vom Heizmediumdurchfluß

die jeweiligen 34 Meßwerte wurden mit Hilfe des Regressionsprogramms QUAREG [24] ermittelt. Der kubische  $T_{HE}$ -Verlauf wurde mit dem Rechenprogramm CRRG [25] bestimmt. Alle Meß- und Rechenergebnisse beziehen sich auf einen Durchsatz an Reaktionsgemisch von  $q = 3,78$  l/h, der einer Verweilzeit von  $\tau = 333$  sec entspricht.

Es ergeben sich folgende Größengleichungen<sup>1)</sup>:

$$T[^\circ\text{C}] = 0,29137 \cdot 10^2 + 0,29180 \cdot u[\text{SKT}] - 0,48464 \cdot 10^{-3} \cdot u^2[\text{SKT}^2] \quad (3.2-9)$$

1) Die Steuervariable (hier Skalenteile Rotamesser für den Heizmediumdurchfluß) wird entsprechend der üblichen Bezeichnung mit  $u$  benannt.

$$T_{HA} [^{\circ}C] = 0,33856 \cdot 10^2 + 0,28925 \cdot u[SKT] - 0,47396 \cdot 10^{-3} \cdot u^2[SKT^2] \quad (3.2-10)$$

$$T_{HM} [^{\circ}C] = 0,33491 \cdot 10^2 + 0,33494 \cdot u[SKT] - 0,63657 \cdot 10^{-3} \cdot u^2[SKT^2] \quad (3.2-11)$$

$$T_{HE} [^{\circ}C] = 0,35222 \cdot 10^2 + 0,89158 \cdot u[SKT] - 0,55783 \cdot 10^{-2} \cdot u^2[SKT^2] + 0,11911 \cdot 10^{-4} \cdot u^3[SKT] \quad (3.2-12)$$

$$T_{HZ} [^{\circ}C] = 0,86496 \cdot 10^2 + 0,38187 \cdot 10^{-1} \cdot u[SKT] - 0,10223 \cdot 10^{-3} \cdot u^2[SKT^2] \quad (3.2-13)$$

Bei der Bestimmung des Wärmedurchgangskoeffizienten  $k_{iF_i}$  nach Gl. (3.2-8) wird  $n = 10$  gewählt, weil erfahrungsgemäß eine zehnfache Unterteilung eine ausreichende Näherung für die Pfropfenströmung ist [26], d.h. die Heizschlange wird durch 10 Rührkessel approximiert. Dabei wird der Durchfluß des Heizmediums innerhalb des interessierenden Bereiches von 40 bis 220 SKT Rotamesser in Abständen von 10 SKT variiert und mit Hilfe der einzelnen Temperaturverläufe (Gl. (3.2-9) bis Gl. (3.2-13))  $k_{iF_i}$  berechnet. Diese  $k_{iF_i}$ -Werte sind in Abb. 3.2-IX als Quadrate eingetragen und werden einer linearen Regression [23] unterzogen, um für einige der weiteren Rechnungen einen handlicheren Ausdruck als Gl. (3.2-8) zu erhalten. Die Regression ergibt die lineare Größengleichung

$$k_{iF_i} [kcal/h \ ^{\circ}C] = - 0,15242 + 0,68164 \cdot 10^{-2} \cdot u[SKT] \quad (3.2-14)$$

Zur Kontrolle für die Zulässigkeit der obengenannten Modifikation, in die Gl. (3.2-9) für die Eintrittstemperatur  $T_{HE}$  die Zulauftemperatur  $T_{HZ}$  einzusetzen, wird mit Hilfe der stationären, globalen Energiebilanz

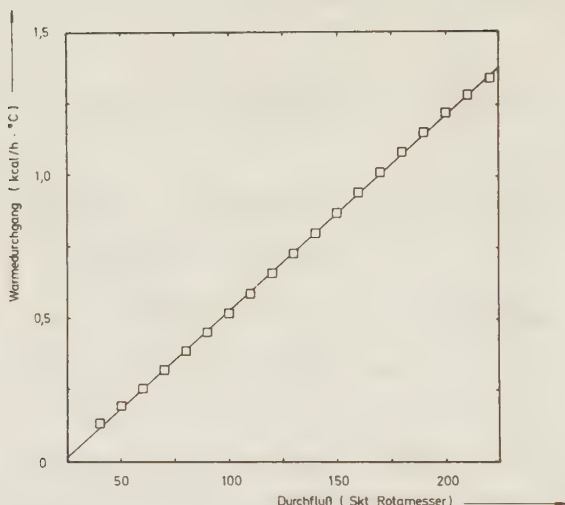


Abb. 3.2-IX Wärmedurchgangskoeffizient in Abhängigkeit vom Heizmediumdurchfluß.

$$q_H = q \frac{\vartheta_{c_p} T - T_o}{\vartheta_{Hc_{pH}} T_{HZ} - T_{HA}} \quad (3.2-15)$$

und den Gleichungen (3.2-9), (3.2-10) und (3.2-13) der Heizmediumdurchsatz  $q_H$  errechnet und mit Messungen verglichen. Die Abb. 3.2-X zeigt, daß die so berechneten und gemessenen Werte gut übereinstimmen. Für den so berechneten Heizmediumdurchfluß gilt auch näherungsweise die mit dem Programm QUAREG [24] ermittelte quadratische Größengleichung<sup>1)</sup>:

1) Diese Beziehung gilt, wie alle übrigen Gleichungen, für eine konstante Thermostatentemperatur von 90 °C.

$$q_H[l/h] = -0,69057 \cdot 10^{-1} + 0,10191 \cdot 10^{-1} \cdot u[SKT] + \\ + 0,13107 \cdot 10^{-3} \cdot u^2[SKT^2] \quad (3.2-16)$$

Über die Gleichungen (3.2-8) bzw. (3.2-14) und (3.2-16), d.h. über die Koeffizienten des 12-dimensionalen Differentialgleichungssystems (Gl. (3.2-3), Gl. (3.2-5) und Gl. (3.2-7)), wirkt die Steuervariable  $u$ .

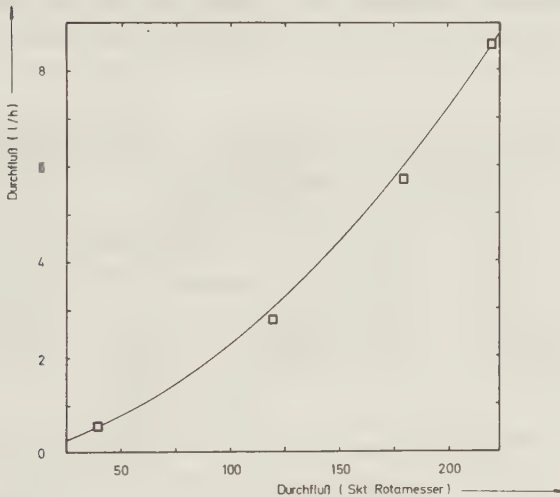


Abb. 3.2-X Gemessene Werte und berechneter Verlauf für den Heizmediumdurchfluß in Abhängigkeit von der Rotamessereinstellung.

### 3.2.2.2 Reaktorvolumen

Der warmwasserbeheizte Reaktor wird bei einer Rührerdrehzahl von  $n = 500 \text{ U min}^{-1}$  bis zum Überlauf mit Wasser gefüllt. Danach wird der Rührermotor abgestellt und der Reaktorinhalt abgesaugt und ausgelitert. Als Mittelwert aus 10 Messungen<sup>1)</sup> ergibt sich das Reaktorvolumen zu  $V = 350 \text{ ml}$ .

### 3.2.2.3 Zusätzliche Wärmekapazitäten

Zur Bestimmung des Faktors  $\Psi$  in Gl. (3.2-7) wird die experimentell ermittelte Sprungantwort der Kesseltemperatur auf eine Heizmediumdurchflußänderung von 40 SKT auf 107 SKT benutzt, welche die Abb. 3.2-XI zeigt. Die instationären Modellgleichun-

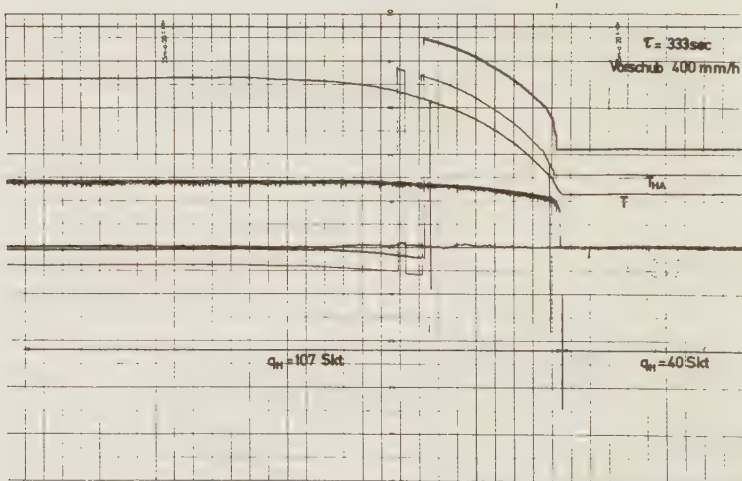


Abb. 3.2-XI Meßschrieb experimenteller Sprungantworten für eine Änderung des Heizmediumdurchflusses von 40 SKT auf 107 SKT.

1) Die Meßergebnisse sind im ITCI deponiert.

gen (3.2-3), (3.2-5) und (3.2-7) werden wiederholt für die 40 SKT Heizmediumdurchfluß entsprechenden Anfangswerte numerisch nach der Methode von RUNGE-KUTTA-MERSON [27]<sup>1)</sup> integriert und dabei der Faktor  $\Psi$  mit Hilfe einer FIBONACCI-Suche [28]<sup>2)</sup> an den experimentellen T-Verlauf angepaßt. Sein Wert ergibt sich zu  $\Psi = 0,55$ . In der Abb. 3.2-XII sind die für diesen  $\Psi$ -Wert simulierte Sprungantwort der Kesseltemperatur als durchgezogene Kurve und die entsprechenden experimentellen Ergebnisse als Kreise dargestellt.

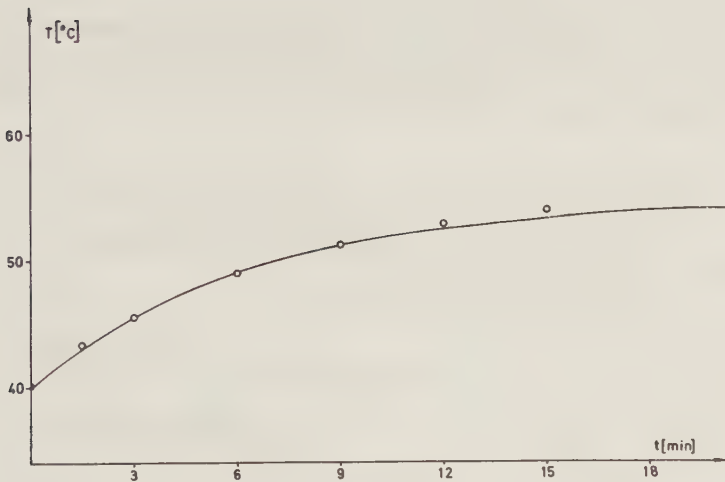


Abb. 3.2-XII Simulierte Sprungantwort und Meßwerte der Kesseltemperatur für eine Änderung des Heizmediumdurchflusses von 40 SKT auf 107 SKT.

- 1) Diese Integrationsmethode arbeitet mit variabler Schrittweite und ermöglicht daher eine Anpassung an das Problem, was zu kürzeren Rechenzeiten führt.
- 2) Diese eindimensionale Suche ist optimal im Sinne des  $\epsilon$ -Minimax-Konzeptes.

### 3.2.3 Experimentelle Überprüfung der Modellgleichungen

Zur Überprüfung der instationären Modellgleichungen wird die Sprungantwort der Austrittstemperatur des Heizmediums und vier weitere Sprungantworten simuliert und mit entsprechenden Experimenten verglichen. Die Abbildungen 3.2-XIII und 3.2-XIV zeigen die zusätzlichen Meßschriebe. Mit Hilfe der Eichkurven<sup>1)</sup> werden die vom Kompensationsschreiber aufgezeichneten Spannungsverläufe interpretiert und einzelne Werte der Kesseltemperatur bzw. der Austrittstemperatur des Heizmediums als Kreise in die Abbildungen 3.2-XV, 3.2-XVI und 3.2-XVII eingetragen. Die durchgezogenen Linien sind die entsprechenden simulierten Sprungantworten. Wegen der geringen Reaktionsenthalpie von  $(-\Delta H_R) = 0,61 \text{ kcal mol}^{-1}$  genügt es hier, nur die Temperaturverläufe zu vergleichen. Die Übereinstimmung zwischen simulierten und experimentell bestimmten Sprungantworten kann als hinreichend genau bezeichnet werden.

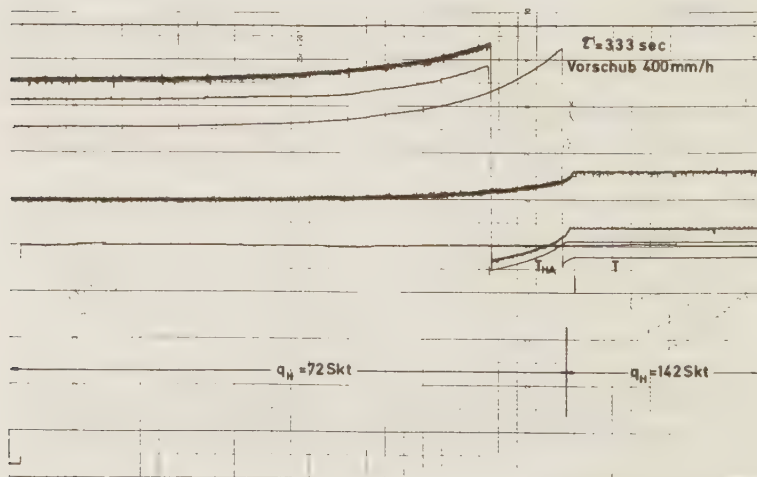


Abb. 3.2-XIII Meßschrieb experimenteller Sprungantworten für eine Änderung des Heizmediumdurchflusses von 142 SKT auf 72 SKT.

1) Deponiert im ITCI.

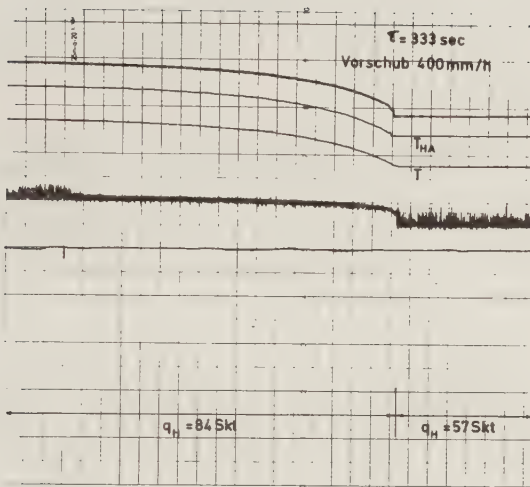


Abb. 3.2-XIV Meßschrieb experimenteller Sprungantworten für eine Änderung des Heizmediumdurchflusses von 57 SKT auf 84 SKT.

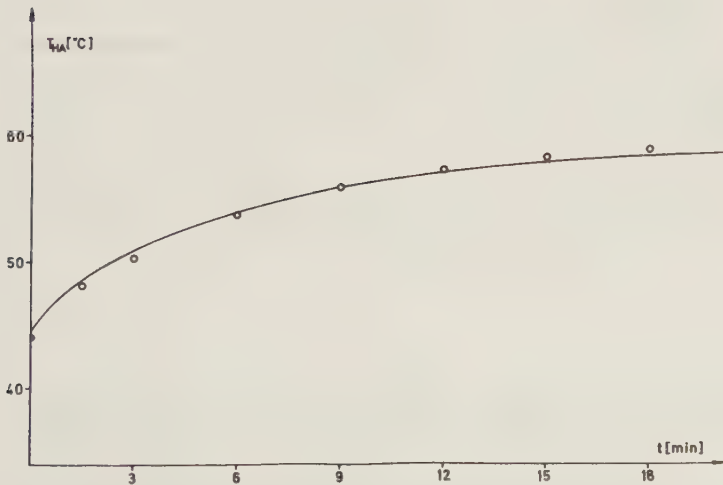


Abb. 3.2-XV Simulierte Sprungantwort und Meßwerte der Austrittstemperatur des Heizmediums für eine Änderung des Heizmediumsdurchflusses von 40 SKT auf 107 SKT.

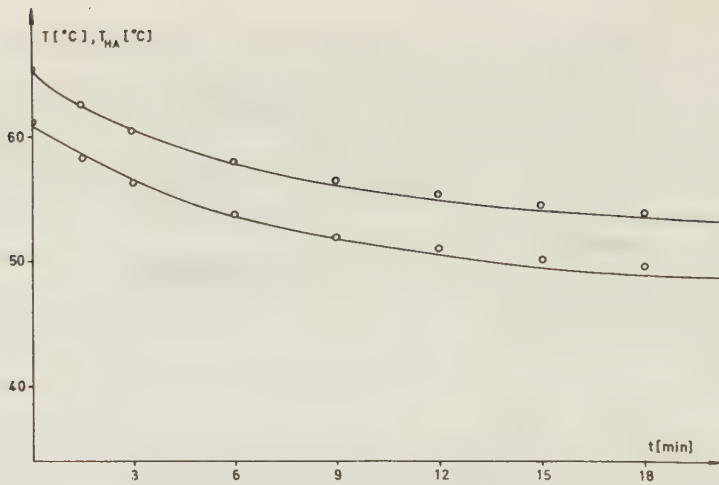


Abb. 3.2-XVI Simulierte Sprungantwort und Meßwerte der Kesseltemperatur und der Austrittstemperatur des Heizmediums für eine Änderung des Heizmediumdurchflusses von 142 SKT auf 72 SKT.

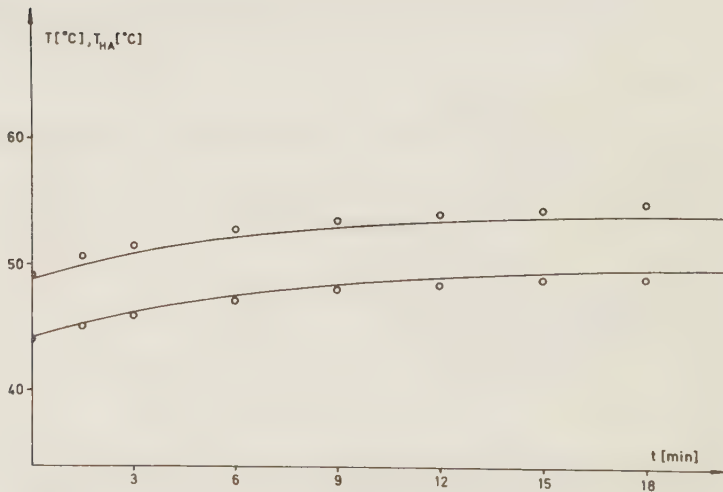


Abb. 3.2-XVII Simulierte Sprungantwort und Meßwerte der Kesseltemperatur und der Austrittstemperatur des Heizmediums für eine Änderung des Heizmediumdurchflusses von 57 SKT auf 84 SKT.

#### 4. Mathematische Grundlagen und Methoden zur Ermittlung zeit- optimaler Trajektorien

Eine allgemeinere mathematische Problemstellung<sup>1)</sup> und die notwendigen Bedingungen für optimale Trajektorien werden des besseren Verständnis wegen zunächst der eigentlichen Darstellung verschiedener Methoden zur Ermittlung zeitoptimaler Trajektorien vorangestellt.

##### 4.1 Problemstellung und notwendige Bedingungen

Das interessierende System wird durch das n-dimensionale Differentialgleichungssystem

$$\dot{\underline{x}}(t) = \underline{f}(\underline{x}(t), \underline{u}(t)) \quad (4.1-1)$$

beschrieben. Sowohl der n-dimensionale Zustandsvektor  $\underline{x}$  als auch der m-dimensionale Steuervektor  $\underline{u}$  (über ihn darf verfügt werden) sind Funktionen des Skalars  $t$ , der in der Regel für die Zeit steht. Die erste Ableitung nach  $t$  wird mit einem Punkt bezeichnet.

Das Variationsproblem besteht darin,  $\underline{u}(t)$  so zu wählen, daß das System von einem gegebenen Anfangszustand

$$\underline{x}(0) = \underline{x}_0 \quad (4.1-2)$$

innerhalb des Zeitraumes  $0 \leq t \leq \theta$  derart in den Endzustand  $\underline{x}(\theta)$  überführt wird, daß eine gegebene Zielfunktion  $F$ , die von

---

1) Das ist die sogenannte Problemstellung nach MAYER [31] .

dem Endzustand und der Endzeit abhängt, minimiert wird:

$$F(\underline{x}(\theta), \theta) \stackrel{!}{=} \text{Min} \quad (4.1-3)$$

Damit eine Minimierung überhaupt möglich ist, muß mindestens eine der Zustandsvariablen am Endzeitpunkt, d.h.  $x_1(\theta)$ ,  $x_2(\theta)$ , ...,  $x_n(\theta)$ , und/oder die Endzeit  $\theta$  selbst nicht spezifiziert, d.h. frei wählbar sein.

Zunächst soll vorausgesetzt werden, daß zu dem Zustandsvektor  $\underline{x}(t)$  und dem Steuervektor  $\underline{u}(t)$  keine weiteren Nebenbedingungen gehören. Später wird für den Steuervektor  $\underline{u}(t)$  diese Voraussetzung fallengelassen und angenommen, daß er durch die zusätzliche Bedingung

$$\underline{u}_{\min} \leq \underline{u}(t) \leq \underline{u}_{\max} \quad (4.1-4)$$

beschränkt ist.

Die Formulierung notwendiger Bedingungen für optimale Trajektorien setzt den Begriff des sogenannten adjungierten Differentialgleichungssystems voraus<sup>1)</sup>. Das adjungierte Differentialgleichungssystem

$$\dot{\underline{p}}(t) = - \underline{A}^T(t) \underline{p}(t) \quad (4.1-5)$$

ist dem Differentialgleichungssystem (4.1-1) zugeordnet, wobei die eigentliche Zuordnung durch die  $n \times n$ -dimensionale Matrix der ersten Ableitungen

---

1) Für mathematische Einzelheiten vgl. Anhang A.2.

$$\underline{A}(t) = [a_{ij}(t)] = \left[ \frac{\partial f_i(\underline{x}(t), \underline{u}(t))}{\partial x_j} \right] \quad (4.1-6)$$

erfolgt. Das Differentialgleichungssystem (4.1-5) des n-dimensionalen adjungierten Vektors  $\underline{p}(t)$ , der sich physikalisch als Sensitivitätsvektor interpretieren läßt, der angibt, wie die Zielfunktion  $F$  auf Änderungen des Zustandsvektors reagiert, ist ein lineares, homogenes Differentialgleichungssystem.

Die weitere Darstellung wird eleganter, wenn man die sogenannte Hamiltonfunktion

$$H(\underline{x}(t), \underline{p}(t), \underline{u}(t)) = \frac{\partial F}{\partial \theta} + \underline{p}^T(t) \underline{f}(\underline{x}(t), \underline{u}(t)) \quad (4.1-7)$$

eingführt. Sie ist ein Maß für die Sensitivität der Zielfunktion hinsichtlich Änderungen der Endzeit bzw. ein Maß für den Winkel, den die Zustandsänderung (Geschwindigkeit) mit dem adjungierten Vektor bildet.

Mit Hilfe der Hamiltonfunktion lassen sich die Differentialgleichungssysteme (4.1-1) und (4.1-5) auch als

$$\dot{\underline{x}}(t) = + \frac{\partial H}{\partial \underline{p}} \quad (4.1-8)$$

$$\dot{\underline{p}}(t) = - \frac{\partial H}{\partial \underline{x}} \quad (4.1-9)$$

formulieren.

Für den optimalen Steuervektor  $\underline{u}^*(t)$  müssen, wie im Abschnitt A.2 des Anhangs gezeigt wird, die zugehörigen Lösungen  $\underline{x}^*(t)$

und  $\underline{p}^*(t)$  der Differentialgleichungssysteme (4.1-8) und (4.1-9) außer den Anfangsbedingungen (4.1-2) auch die folgenden End- und Abbruchbedingungen erfüllen:

|                                           | freie Endzeit                                                           | fixierte Endzeit                                                        |
|-------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|
| Abbruchbedingung<br>(für die Integration) | $H(\theta) = 0$                                                         | $t = \theta$                                                            |
| fixierter Endzustand                      | $x_i(\theta) = x_{i\theta}$                                             | $x_i(\theta) = x_{i\theta}$                                             |
| freier Endzustand                         | $p_i(\theta) = \left. \frac{\partial F}{\partial x_i} \right _{\theta}$ | $p_i(\theta) = \left. \frac{\partial F}{\partial x_i} \right _{\theta}$ |

(4.1-10)

Für einen nichtbeschränkten optimalen Steuervektor  $\underline{u}^*(t)$  müssen außerdem, wie im Abschnitt A.2 des Anhangs ebenfalls gezeigt wird, die Identitäten

$$\frac{\partial H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}^*(t))}{\partial \underline{u}} = 0 \quad (4.1-11)$$

gelten. Die Beziehung (4.1-11) stellt  $m$  algebraische Gleichungen dar, die zu jedem Zeitpunkt befriedigt sein müssen. Die Gleichungen (4.1-2), (4.1-8), (4.1-9), (4.1-10) und (4.1-11) sind die notwendigen Bedingungen einer optimalen Trajektorie für den Fall eines unbeschränkten Steuervektors; sie werden auch als Euler-Lagrangesche Gleichungen bezeichnet.

Für den Fall eines entsprechend Gl. (4.1-4) beschränkten Steuervektors tritt anstelle von Gl. (4.1-11) die Beziehung

$$H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}^*(t)) \leq H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}(t)) \quad (4.1-12)$$

Die mathematischen Einzelheiten hierzu entnehme man dem Abschnitt A.2 des Anhangs. Dort wird auch gezeigt, daß die Hamiltonfunktion entlang einer optimalen Trajektorie, also für  $\underline{x}^*(t)$ ,  $\underline{p}^*(t)$  und  $\underline{u}^*(t)$  einen konstanten Wert hat, d.h.

$$H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}^*(t)) \equiv \text{const} \quad 0 \leq t \leq \theta^* \quad (4.1-13)$$

Die Aussagen (4.1-12) und (4.1-13) bezeichnet man als Minimumprinzip von PONTRJAGIN (in der Literatur meistens für [ 29 ]  $F(\underline{x}(\theta), \theta) \stackrel{!}{=} \text{Max}$  hergeleitet und daher auch als Maximumprinzip bezeichnet).

Für eine zeitoptimale Trajektorie kennt man aufgrund der Abbruchbedingung (4.1-10) die Konstante der Identität (4.1-13), sie hat den Wert Null.

Da die rechnerische Ermittlung zeitoptimaler Trajektorien das eigentliche Problem dieses Abschnitts darstellt, wird für diesen Sonderfall ( $F \equiv \theta$ ) der Gl. (4.1-3) das Minimumprinzip nochmals in der von PONTRJAGIN gewählten Formulierung zitiert [ 29 ] :

"Es wird angenommen, die Steuerfunktion  $\underline{u}^*(t)$ ,  $0 \leq t \leq \theta^*$ , sei zulässig (d.h.  $\underline{u}_{\min} \leq \underline{u}^*(t) \leq \underline{u}_{\max}$ ) und überführe innerhalb der Zeit  $\theta^*$  den zugehörigen Zustandsvektor  $\underline{x}^*(t)$  aus der Lage  $\underline{x}_0$  in die Lage  $\underline{x}_\theta$  (d.h.  $\underline{x}^*(0) = \underline{x}_0$  und  $\underline{x}^*(\theta^*) = \underline{x}_\theta$ ). Für zeitoptimales Verhalten der Steuerung  $\underline{u}^*(t)$  und der Trajektorie  $\underline{x}^*(t)$  ist die Existenz eines nicht identisch verschwindenden, zu  $\underline{u}^*(t)$  und  $\underline{x}^*(t)$  gehörenden Funktionsvektors  $\underline{p}^*(t)$  notwendig, derart, daß

- 1.) für alle  $t$ ,  $0 \leq t \leq \theta^*$ , die Hamiltonfunktion  $H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}(t))$  der Variablen  $\underline{u}(t)$ , mit  $\underline{u}_{\min} \leq \underline{u}(t) \leq \underline{u}_{\max}$ , im Punkt  $\underline{u}(t) = \underline{u}^*(t)$  ihr absolutes Minimum

$$H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}^*(t)) \leq H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}(t))$$

annimmt (vgl. Gl. (A.2-58)).

2.) zum Endzeitpunkt  $\theta^*$  die Beziehung

$$H(\underline{x}^*(\theta^*), \underline{p}^*(\theta^*), \underline{u}^*(\theta^*)) = 0 \quad (4.1-14)$$

gilt (vgl. Gl. (A.2-32)).

Wenn  $\underline{x}^*(t)$ ,  $\underline{p}^*(t)$  und  $\underline{u}^*(t)$  die Differentialgleichungssysteme (4.1-8) und (4.1-9) und die Bedingung 1.) befriedigen, dann ist die Größe  $H$  als Funktion der Variablen  $t$  konstant, so daß die Beziehung (4.1-14) nicht nur für  $\theta^*$ , sondern für jeden Augenblick  $t$  nachgeprüft werden kann.

#### 4.2 Lösungsmethoden

Die Wirkungsweise und die Effektivität der in der Literatur beschriebenen Methoden für die Ermittlung optimaler Trajektorien wird in der Regel an Problemen mit einer relativ geringen Anzahl von Modellgleichungen demonstriert. Ob und wie diese Methoden bei höher dimensional Problemen arbeiten, ist bisher kaum untersucht bzw. nicht publiziert worden. Selbst bei Problemen mit einer geringen Anzahl von Modellgleichungen mangelt es noch bis heute an Kriterien für die Auswahl einer geeigneten Optimiermethode, da die dazu notwendigen, systematischen Vergleiche der einzelnen Verfahren bislang unterblieben.

Wegen dieser Gründe werden zunächst in den folgenden Unterabschnitten eine Reihe in der Literatur referierter Methoden zusammengestellt und sowohl ihre Voraussetzungen als auch ihre theoretischen Wirkungsabläufe dargelegt. Im Abschnitt 5 wird später auf alle im folgenden dargestellten Methoden zurückgegriffen und versucht, mit diesen Verfahren zeitopti-

male Trajektorien für die im Abschnitt 3 aufgestellten Modellgleichungen zu ermitteln. Dort wird auch diskutiert, welche allgemeingültigen Schlüsse sich bezüglich der Auswahl, des Aufwandes und der Effektivität einer dieser Methode aufgrund der Ergebnisse ziehen lassen.

#### 4.2.1 PONTRJAGIN-Methode [30]

Die PONTRJAGIN-Methode geht bei der Ermittlung einer zeitoptimalen Trajektorie direkt von deren notwendigen Bedingungen (vgl. Abschnitt 4.1) aus. In der Regel kann die zeitoptimale Trajektorie nur durch sukzessive Approximation gefunden werden; dabei sind prinzipiell zwei Vorgehensweisen möglich:

- 1.) Man schätzt die  $n$  unbekannten Funktionswerte  $\underline{p}(0)$  für  $t = 0$ , integriert die beiden  $n$ -dimensionalen Differentialgleichungssysteme (4.1-8) und (4.1-9) von  $t = 0$  bis z.B.  $x_n = x_{n\theta}$  (Vorwärtsintegration) und benutzt dann die übrigen Endbedingungen  $x_{i\theta}$ ,  $i = 1, 2, \dots, (n-1)$ , um die geschätzten Werte  $\underline{p}(0)$  zu korrigieren.
- 2.) Man schätzt die  $n$  unbekannten Funktionswerte  $\underline{p}(\theta)$  für  $t = \theta$ , integriert die beiden  $n$ -dimensionalen Differentialgleichungssysteme (4.1-8) und (4.1-9) von  $t = \theta$  bis z.B.  $x_n = x_{n0}$  (Rückwärtsintegration) und benutzt dann die übrigen Anfangsbedingungen  $x_{i0}$ ,  $i = 1, 2, \dots, (n-1)$ , um die geschätzten Werte  $\underline{p}(\theta)$  zu korrigieren.

Bei beiden Vorgehensweisen muß zu jedem Zeitpunkt  $t$  der Integration zur Bestimmung von  $u(t)$  die Hamiltonfunktion  $H$  minimiert werden. Dies bedeutet, daß bei einer Integration mit Hilfe eines Runge-Kutta-Verfahrens 4. Ordnung die Hamiltonfunktion 4mal während eines einzigen Integrationsschrittes minimiert werden muß. Dieser Rechenaufwand ist erheblich, wenn die Minimierung mit einer Optimierungsmethode durchgeführt werden muß, d.h. wenn sich kein expliziter analytischer Ausdruck für die Lösung von  $\partial H / \partial \underline{u} = \underline{0}$  (vgl. Gl. (A.1-11)) angeben läßt.

Als weitere Schwierigkeit kommt hinzu, daß bei beiden Vorgehensweisen jeweils eines der beiden Differentialgleichungssysteme (4.1-8) bzw. (4.1-9) in einer Richtung zu integrieren ist, in der es zu numerischer Instabilität neigt. Dieser Sachverhalt soll an der Differentialgleichung

$$\dot{x}(t) = -x(t)$$

und an der zugehörigen adjungierten Differentialgleichung (vgl. Gl. (4.1-5))

$$\dot{p}(t) = +p(t)$$

verdeutlicht werden. Die Lösungen dieser Differentialgleichungen lauten

$$x(t) = x_0 e^{-t}$$

bzw.

$$p(t) = p_0 e^{+t}$$

Wenn  $x(t)$  in einer Integrationsrichtung zu numerischer Instabilität neigt, ist  $p(t)$  in dieser Richtung numerisch stabil, erweist sich dagegen  $p(t)$  in einer Integrationsrichtung als numerisch instabil, dann zeigt  $x(t)$  numerische Stabilität. Diese Feststellung hat man auch bei komplizierteren Differentialgleichungen und Differentialgleichungssystemen gemacht [32].

Im Chemie-Ingenieur-Wesen sind erfahrungsgemäß [31] die Modellgleichungen in Richtung zunehmender Zeit numerisch stabil, die zugehörigen adjungierten Gleichungen neigen in dieser Richtung dagegen zu numerischer Instabilität.

Von den beiden o.g. Vorgehensweisen ist die Rückwärtsintegration vorzuziehen, da der physikalisch sinnvolle Wertebereich für  $\underline{x}(t)$  im Gegensatz zu dem von  $\underline{p}(t)$  relativ leicht abgeschätzt werden kann, und somit sowohl unrealistische Trajektorien (außerhalb des physikalischen Gültigkeitsbereiches der Gl. (4.1-1)), wie sie sich für extreme Steuerungen  $\underline{u}(t)$  ergeben können, als auch befürchtete numerische Instabilitäten im  $\underline{x}(t)$ -Verlauf erkannt werden können.

Als Algorithmus für die PONTRJAGIN-Methode ist daher folgender Ablauf denkbar:

- 1.) Schätze für den Zeitpunkt  $t = \theta$  die  $n$  adjungierten Variablen  $\underline{p}(\theta)$ .
- 2.) Integriere von  $t = \theta$  aus die beiden Differentialgleichungssysteme (4.1-8) und (4.1-9) rückwärts, bis die  $n$ -te Komponente des Zustandsvektors  $\underline{x}$  gleich ihrem geforderten Anfangswert ist, d.h.  $x_n(t) = x_{n0}$ , oder eine der Komponenten des Zustandsvektors einen Wert angenommen hat, der physikalisch nicht mehr zu realisieren ist. Bezeichne diesen Zeitpunkt als  $t_0$ . Wähle bei dieser Rückwärtsintegration  $\underline{u}$  stets so (eventuell mit Hilfe einer Optimiermethode), daß die Hamiltonfunktion zu jedem Zeitpunkt  $t$  im Intervall  $\langle \underline{u}_{\min}, \underline{u}_{\max} \rangle$  minimiert wird.
- 3.) Berechne für den Zeitpunkt  $t_0$  die modifizierte Zielfunktion

$$\hat{F} = (\underline{x}(t_0) - \underline{x}_0)^T \underline{D}(\underline{x}(t_0) - \underline{x}_0) \quad (4.2-1)$$

und betrachte diesen Funktionswert als zu den Parametern  $\underline{p}(\theta)$  gehörig, d.h.  $\hat{F}(p_1(\theta), \dots, p_n(\theta))$ .  $\underline{D}$  steht für eine geeignete Diagonalmatrix.

- 4.) Verbessere die Parameter  $\underline{p}(\theta)$  mit Hilfe einer Parameter-optimierungsmethode.
- 5.) Wenn das (noch zu spezifizierende Abbruchkriterium für die Optimierungsmethode) nicht erfüllt ist, wiederhole das Verfahren von Schritt 2.) an.

#### 4.2.2 Abstieg im Funktionenraum

Die Methode des Abstiegs im Funktionenraum ist vornehmlich zur Lösung von Problemen ohne Beschränkung für den Steuervektor  $\underline{u}(t)$  (vgl. Gl. (4.1-4)) und mit fixierter Endzeit  $\theta$  sowie frei wählbaren Endzuständen  $\underline{x}_1(\theta)$  geeignet [33], [34]. Dieser Fall soll zunächst diskutiert werden. Für die Variation der Zielfunktion bei fester Endzeit  $\theta$  (vgl. Gl. (A.2-20)) kann man, wenn man die Glieder höherer Ordnung vernachlässigt,

$$\delta F = \int_0^{\theta} \left( \frac{\partial H}{\partial \underline{u}} \right)^T \delta \underline{u}(t) dt \quad (4.2-2)$$

schreiben.

Falls eine gegebene Steuerfunktion  $\underline{\bar{u}}(t)$  nicht gleich der optimalen Steuerfunktion  $\underline{u}^*(t)$  ist, läßt sie sich verbessern, indem man z.B.

$$\underline{u}(t) = \underline{\bar{u}}(t) - \epsilon \frac{\partial H}{\partial \underline{u}} \quad (4.2-3)$$

setzt. Die Korrektur (4.2-3) führt zu  $\delta \underline{\bar{u}}(t) = -\epsilon \partial H / \partial \underline{u}$  und somit entsprechend Gl. (4.2-2) zu  $\delta F < 0$ , d.h. zu einer Abnahme der Zielfunktion. Die wiederholte Anwendung der Korrekturvorschrift (4.2-3) ist der Grundgedanke der Methode des Abstiegs im Funktionenraum. Der Algorithmus lautet für festes  $\theta$  und frei wählbare  $\underline{x}_1(\theta)$  [35]:

- 1.) Wähle eine geeignete Steuerfunktion  $\underline{u}(t)$  als Startpunkt.
- 2.) Integriere das Differentialgleichungssystem (4.1-8) der Zustandsvariablen mit den Anfangsbedingungen  $\underline{x}(0) = \underline{x}_0$  von  $t = 0$  bis  $t = \theta$  für die angenommene bzw. bereits korrigierte Steuerfunktion  $\underline{u}(t)$ .
- 3.) Integriere das Differentialgleichungssystem (4.1-9) der adjungierten Variablen mit den Endbedingungen  $\underline{p}(\theta) = \partial F / \partial \underline{x}$  (vgl. Gl. (4.1-10)) von  $t = \theta$  bis  $t = 0$  rückwärts. Bei dieser Rückwärtsintegration berechne gleichzeitig  $\partial H / \partial \underline{u}$  als Funktion der Zeit.
- 4.) Wenn das (noch zu spezifizierende) Abbruchkriterium nicht erfüllt ist, ersetze  $\underline{u}(t)$  durch  $\underline{u}(t) - \epsilon \partial H / \partial \underline{u}$  und wiederhole das Verfahren von Schritt 2.) an.

Die Größe  $\epsilon$  in der Korrekturvorschrift (4.2-3) ist so zu wählen, daß einerseits die Glieder  $O(\delta u^2)$  vernachlässigt werden können, und somit eine Abnahme der Zielfunktion sichergestellt ist, und daß andererseits der Iterationsprozeß nicht zu langsam konvergiert.

Ein wesentlicher Vorteil dieser Methode (z.B. im Vergleich zur PONTRJAGIN-Methode) besteht darin, daß das Differentialgleichungssystem der Zustandsvariablen bzw. das der adjungierten Variablen jeweils in der Richtung integriert wird, in der es sich erfahrungsgemäß als numerisch stabil verhält.

Die Methode des Abstiegs im Funktionenraum kann auch bei der Lösung zeitoptimaler Probleme benutzt werden. Dazu modifiziert man das eigentliche Problem, die Endzeit bei fixiertem Endzustand zu minimieren, dahingehend, daß man anstelle der Zielfunktion  $F = \theta$  die Funktion

$$\tilde{F} = \theta + \frac{1}{2} (\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta)^T \underline{D}(\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta) \quad (4.2-4)$$

minimiert. Durch das Einführen einer sogenannten Straffunktion

$\frac{1}{2}(\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta)^T \underline{D}(\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta)$  entledigt man sich des fixierten Endzustandes und erhält, wie bei der ursprünglichen Problemstellung, für jede der Differentialgleichungen der Systeme (4.1-8) und (4.1-9) nur einen Anfangs- bzw. einen Endwert (entkoppelte Randbedingungen).  $\underline{D}$  steht auch hier für eine geeignete Diagonalmatrix.

Die Beschränkung der Steuerfunktion (4.1-4) kann z.B. durch die Transformation

$$u_i(t) = u_{i,\min} + (u_{i,\max} - u_{i,\min}) \sin^2 y_i(t) \quad (4.2-5)$$

$$i = 1, 2, \dots, m$$

berücksichtigt werden. Die Suche erfolgt dann nicht mehr im beschränkten  $\underline{u}$ -Raum, sondern im unbeschränkten  $\underline{y}$ -Raum. Ferner besteht die Möglichkeit, bei Verletzung einer Grenze die betreffende Komponente der Steuerfunktion gleich der verletzten Grenze zu setzen.

Als Algorithmus zur Ermittlung einer zeitoptimalen Trajektorie mit Hilfe der Methode des Abstiegs im Funktionenraum ist folgender Ablauf denkbar:

- 1.) Wähle eine zulässige Steuerfunktion  $\underline{u}(t)$  als erste Schätzung für  $\underline{u}^*(t)$ .
- 2.) Integriere für das vorliegende, zulässige  $\underline{u}(t)$  das Differentialgleichungssystem (4.1-8) der Zustandsvariablen mit den Anfangsbedingungen  $\underline{x}(0) = \underline{x}_0$  bis zu dem Zeitpunkt, zu welchem die Funktion

$$\hat{F}(t) = t + \frac{1}{2} (\underline{x}(t) - \underline{x}_\theta)^T \underline{D}(\underline{x}(t) - \underline{x}_\theta) \quad (4.2-6)$$

ihr absolutes Minimum erreicht. Bezeichne diesen Zeitpunkt mit  $\theta$ . (In Gl. (4.2-6) steht  $\underline{D}$  für eine geeignete Diagonalmatrix.)

- 3.) Integriere das adjungierte Differentialgleichungssystem (4.1-9) mit der Endbedingung (vgl. Gl. (4.1-10))

$$\underline{p}(\theta) = \frac{\partial \tilde{F}}{\partial \underline{x}} = \underline{D}(\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta) = \frac{\partial \hat{F}}{\partial \underline{x}} \bigg|_{t=\theta} \quad (4.2-7)$$

von  $t = \theta$  bis  $t = \theta$  rückwärts. Bei dieser Rückwärtsintegration berechne gleichzeitig  $\partial H / \partial \underline{u}$  als Funktion der Zeit.

- 4.) Bezeichne  $\underline{u}(t) - \epsilon \partial H / \partial \underline{u}$  als  $\underline{\bar{u}}(t)$  und kontrolliere, ob  $\underline{\bar{u}}(t)$  eine der Grenzen (4.1-4) verletzt. In den Zeitintervallen, in denen dies der Fall ist, setze die betreffende Komponente von  $\underline{\bar{u}}(t)$  gleich der verletzten Grenze, um ein zulässiges  $\underline{\bar{u}}(t)$  zu erhalten.
- 5.) Integriere das Differentialgleichungssystem der Zustandsvariablen für dieses zulässige  $\underline{\bar{u}}(t)$  von  $t = 0$  mit  $\underline{x}(0) = \underline{x}_0$  bis zum absoluten Minimum von  $\hat{F}$ .
- 6.) Wiederhole die Schritte 4.) und 5.) für verschiedene Werte von  $\epsilon$  und ermittle durch Interpolation den Wert  $\epsilon^*$ , der zur größten momentanen Abnahme von  $\hat{F}$  führt (vgl. Gl. (4.2-4)).
- 7.) Bezeichne  $\underline{u}(t) - \epsilon^* \partial H / \partial \underline{u}$  als  $\underline{u}(t)$  und kontrolliere, ob dieses neue  $\underline{u}(t)$  eine der Grenzen (4.1-4) verletzt. Wenn dies der Fall ist, setze die betreffende Komponente des neuen  $\underline{u}(t)$  gleich der verletzten Grenze. Falls das (noch zu spezifizierende) Abbruchkriterium noch nicht erfüllt ist, wiederhole für die neue zulässige Steuerfunktion  $\underline{u}(t)$  das ganze Verfahren von Schritt 2.) an.

Das Abbruchkriterium für die Vorwärtsintegration

$$\hat{F} = 1 + [\underline{D}(\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta)]^T \underline{f}(\underline{x}(\theta), \underline{u}(\theta)) = 0 \quad (4.2-8)$$

ergibt zusammen mit der Endbedingung (4.2-7) der adjungierten Variablen

$$1 + \underline{p}(\theta)^T \underline{f}(\underline{x}(\theta), \underline{u}(\theta)) = 0 \quad (4.2-9)$$

Da aufgrund der Multiplikatoren-Regel [36] nicht alle  $p_i(\theta)$  gleichzeitig verschwinden können, muß die Extremale, die  $\tilde{F}$  minimiert, notgedrungen von den vorgegebenen Endwerten abweichen. Nimmt man an, daß die Abweichungen so klein sind, daß die Extremale, die  $\tilde{F}$  minimiert, nahe bei der Extremalen liegt, die durch den gewünschten Endpunkt  $\underline{x}_\theta$  geht (mit nahe ist gemeint, daß zu beiden Extremalen näherungsweise dieselben  $p_i(\theta)$  gehören), dann gibt es zwei Möglichkeiten, die Abweichungen in tolerierbaren Grenzen zu halten.

Die erste Methode [34] besteht darin, daß man die Diagonalelemente der Matrix  $\underline{D}$  gegen Ende der Rechnung allmählich, d.h. von Iteration zu Iteration, erhöht. Dies kann jedoch wegen des ungenauen Abbruchs und der unvermeidlichen numerischen Fehler zu Schwierigkeiten führen.

Bei der zweiten Methode [37] verschiebt man die Randwerte (boundary shift), d.h. nachdem die Methode konvergierte, subtrahiert man  $\Delta \underline{x}(\theta) = \underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta$  von  $\underline{x}_\theta$  und wiederholt die gesamte Rechnung für die neue Zielfunktion

$$\tilde{F} = \theta + \frac{1}{2} (\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta + \Delta \underline{x}(\theta))^T \underline{D}(\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta + \Delta \underline{x}(\theta)) \quad (4.2-10)$$

Dies führt dazu, daß nach einigen Randwertverschiebungen die letzte Extremale praktisch durch den gewünschten Endpunkt  $\underline{x}_\theta$  geht.

#### 4.2.3 Quasilinearisierung [38]

Die Methode der Quasilinearisierung ist ein für Funktionsgleichungen verallgemeinertes Newton-Raphson-Verfahren zur Lösung eines nichtlinearen Randwertproblems. Die Lösung des nichtlinearen Randwertproblems ergibt sich dabei als Grenzwert einer Folge linearer Randwertprobleme.

Die Euler-Lagrangeschen Gleichungen eines Variationsproblems mit fixierter Endzeit  $\theta$ , frei wählbarem Endzustand  $\underline{x}(\theta)$  und ohne zu berücksichtigende Grenzen (vgl. Gl. (4.1-4)) stellen für den Fall, daß sich aus der notwendigen Bedingung  $\partial H / \partial \underline{u} = 0$  ein expliziter, analytischer Ausdruck für  $\underline{u}^*$  gewinnen läßt, ein nichtlineares Randwertproblem dar. Eliminiert man nämlich  $\underline{u}(t)$  aus den Differentialgleichungssystemen (4.1-8) und (4.1-9) und faßt die beiden n-dimensionalen Vektoren  $\underline{x}(t)$  und  $\underline{p}(t)$  zu dem 2n-dimensionalen Vektor  $\underline{y}(t)$  zusammen

$$\underline{y}^T(t) = [x_1(t), \dots, x_n(t), p_1(t), \dots, p_n(t)] \quad (4.2-11)$$

dann kann man die Gleichungen (4.1-8) und (4.1-9) auch als 2n-dimensionales Differentialgleichungssystem der Form

$$\dot{\underline{y}}(t) = \underline{g}(\underline{y}(t)) \quad (4.2-12a)$$

schreiben. Die ersten n Komponenten des Vektors  $\underline{y}$  sind für  $t = 0$  spezifiziert.

$$\underline{y}_j(0) = \underline{y}_{j0} = \underline{x}_{j0} \quad j = 1, 2, \dots, n \quad (4.2-12b)$$

und die letzten n Komponenten sind für  $t = \theta$  gegeben:

$$y_j(\theta) = y_{j\theta} = p_{j-n}(\theta) = \frac{\partial F}{\partial x_{j-n}} \quad j = (n+1), \dots, 2n \quad (4.2-12c)$$

Bei der Methode der Quasilinearisierung nimmt man an, daß man ausgehend von der  $i$ -ten Approximation mit der  $(i+1)$ -ten Approximation die exakte Lösung des nichtlinearen Randwertproblems (4.2-12) findet, d.h.

$$\dot{y}^{(i+1)} = g(y^{(i+1)}) \quad (4.2-13)$$

Entwickelt man die rechte Seite der Gl. (4.2-13) in eine Taylorreihe an der Stelle  $y^{(i)}$ , so ergibt sich

$$\dot{y}^{(i+1)} = g(y^{(i)}) + J(y^{(i)}) [y^{(i+1)} - y^{(i)}] + \dots \quad (4.2-14)$$

mit der sogenannten Jacobi-Matrix

$$J = \left[ \frac{\partial g_i}{\partial y_j} \right] = \begin{bmatrix} \partial g_1 / \partial y_1 & \dots & \partial g_1 / \partial y_{2n} \\ \vdots & & \vdots \\ \partial g_{2n} / \partial y_1 & \dots & \partial g_{2n} / \partial y_{2n} \end{bmatrix} \quad (4.2-15)$$

Ordnet man um und vernachlässigt die Glieder höherer Ordnung, dann findet man als Iterationsvorschrift für die Quasilinearisierung

$$\dot{y}^{(i+1)} = J(y^{(i)}) y^{(i+1)} + [g(y^{(i)}) - J(y^{(i)}) y^{(i)}] . \quad (4.2-16)$$

Die Gl. (4.2-16) ist ein lineares, inhomogenes Differentialgleichungssystem mit veränderlichen Koeffizienten. Seine Lösung kann für die Randbedingungen (4.2-12b) und (4.2-12c) durch Superponieren der Partikularlösung, welche die Randbedingung (4.2-12b) befriedigt, und n geeigneter, linear unabhängiger Lösungen des inhomogenen Differentialgleichungssystems

$$\dot{\underline{y}}_h^{(i+1)} = \underline{J}(\underline{y}^{(i)}) \underline{y}_h^{(i+1)} \quad (4.2-17)$$

gefunden werden. Zur Erzeugung der linear unabhängigen Lösungen des homogenen Differentialgleichungssystems (4.2-17) werden die Anfangsbedingungen

$$\underline{y}_h^{(i+1)}(0) = \begin{bmatrix} \underline{0} \\ \underline{I} \end{bmatrix} \quad (4.2-18)$$

gewählt (0 steht hier für eine nxn-dimensionale Nullmatrix und I für eine nxn-dimensionale Einheitsmatrix) und die zugehörigen Lösungen in der 2nxn-dimensionalen Matrix  $\underline{y}^{(i+1)}(t)$  zusammengefaßt.

Mit  $\underline{y}_p^{(i+1)}(t)$  soll die Partikularlösung des Differentialgleichungssystems (4.2-16) für die Anfangsbedingung

$$\underline{y}_p^{(i+1)}(0) = \begin{bmatrix} x_{10} \\ \vdots \\ x_{n0} \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{bmatrix} \quad (4.2-19)$$

bezeichnet werden.

Die Lösung des mit den Gleichungen (4.2-16), (4.2-12b) und (4.2-12c) vorliegenden linearen Randwertproblems lautet somit allgemein

$$\underline{y}^{(i+1)}(t) = \underline{y}_p^{(i+1)}(t) + \underline{y}_h^{(i+1)}(t) \underline{c} \quad (4.2-20)$$

Für die Bestimmung des noch unbekannten n-dimensionalen Vektors  $\underline{c}$  stehen die Randbedingungen (4.2-12c) zur Verfügung, so daß  $\underline{y}^{(i+1)}(t)$  errechnet werden kann. Man betrachtet dann  $\underline{y}^{(i+1)}(t)$  als  $\underline{y}^{(i)}(t)$  für die nächste Iteration und setzt das Verfahren solange fort, bis die Lösungsfolge der linearen Randwertprobleme gegen die Lösung des nichtlinearen Randwertproblems konvergiert ist.

Die Methode der Quasilinearisierung kann auch bei der Ermittlung zeitoptimaler Trajektorien benutzt werden, wenn es möglich ist, das eigentliche Problem für den fixierten Endzustand  $\underline{x}(\theta) = \underline{x}_\theta$  die Endzeit  $\theta$  zu minimieren, in eine Folge von Problemen zu zerlegen, bei denen die Endzeit  $\theta^{(i)}$  fixiert und der Endzustand  $\underline{x}(\theta^{(i)})$  frei wählbar sind. Als Zielfunktion ist dabei

$$F^{(i)} = \frac{1}{2} (\underline{x}(\theta^{(i)}) - \underline{x}_\theta)^T \underline{D}(\underline{x}(\theta^{(i)}) - \underline{x}_\theta) \quad (4.2-21)$$

denkbar [37]. Um von der Endzeit  $\theta^{(i)}$  des i-ten Problems zu einer Endzeit  $\theta^{(i+1)}$  für das folgende (i+1)-te Problem zu gelangen, kann man den Endwert einer geeigneten Komponente von  $\underline{x}(\theta^{(i)})$  verwenden. Geeignet ist z.B. eine solche Komponente  $x_r(\theta^{(i)})$ , die für zunehmende Endzeiten  $\theta^{(i)}$  monoton abnimmt. Als Korrektur ist dann

$$\theta^{(i+1)} = \theta^{(i)} + \frac{x_r(\theta^{(i)}) - x_{r\theta}}{x_r(\theta^{(i-1)}) - x_r(\theta^{(i)})} (\theta^{(i)} - \theta^{(i-1)}) \quad (4.2-22)$$

möglich.

Auch Grenzen für den Steuervektor (vgl. Gl. (4.1-4)) können berücksichtigt werden, wenn man die oben geschilderte Methode der Quasilinearisierung leicht modifiziert: der Steuervektor  $\underline{u}(t)$  wird nicht mit Hilfe der Beziehung  $\partial H / \partial \underline{u} = \underline{0}$  aus den Differentialgleichungssystemen eliminiert, sondern, immer wenn man ihn für die weitere Rechnung benötigt, wird er mit einem Optimierprogramm entsprechend der Beziehung (4.1-12) bestimmt.

Als Algorithmus zur Ermittlung einer zeitoptimalen Trajektorie bei Berücksichtigung von Grenzen für den Steuervektor ist somit folgender Ablauf denkbar:

- 1.) Lege zwei Endzeiten,  $\theta^{(1)}$  und  $\theta^{(2)}$ , fest.
- 2.) Nimm die Funktionsverläufe  $\underline{y}(t)$  als konstant an: die ersten  $n$  Komponenten von  $\underline{y}(t)$  setze gleich den Randbedingungen bei  $t = 0$ , die letzten Komponenten setze beliebig fest, z.B. gleich Null. Befolge die Schritte 3.) bis 5.) zunächst für diese konstanten Funktionsverläufe und die Endzeit  $\theta^{(1)}$  und im Anschluß daran, ausgehend von dem dann vorliegenden  $\underline{y}(t)$ , für die Endzeit  $\theta^{(2)}$ .
- 3.) Berechne die Partikularlösung des linearisierten, inhomogenen Differentialgleichungssystems für die Anfangsbedingung (4.2-19) und  $n$  linear unabhängige Lösungen des linearisierten, homogenen Differentialgleichungssystems für die Anfangsbedingungen (4.2-18). Immer wenn bei diesen numerischen Integrationen von  $t = 0$  bis  $t = \theta^{(i)}$  der Steuervektor  $\underline{u}(t)$  benötigt wird, bestimme ihn mit Hilfe eines Optimierprogramms so, daß die Bedingung (4.1-12) erfüllt ist.
- 4.) Berechne ein neues  $\underline{y}(t)$  durch Superponieren der Partikularlösung und der homogenen Lösungen entsprechend Gleichung (4.2-20). Die  $n$  unbekannten Parameter bestimme mit Hilfe der Randbedingung bei  $t = \theta^{(i)}$  (vgl. Gl. (4.2-12c)).
- 5.) Wiederhole die Schritte 3.) und 4.) mit dem jeweils vorliegenden  $\underline{y}(t)$  als Linearisierungsstelle so lange, bis ein

erstes (noch zu spezifizierendes) Abbruchkriterium erfüllt ist.

- 6.) Berechne mit Hilfe der Gl. (4.2-22) eine neue Endzeit und wiederhole ausgehend von den jeweils vorliegenden  $\underline{y}(t)$  die Schritte 3.) bis 5.) so lange, bis das (noch zu spezifizierende) zweite Abbruchkriterium erfüllt ist.

#### 4.2.4 Min-H-Methode

Die Min-H-Methode ist ein von KELLY [34] referiertes Verfahren, das nur in der Endphase einer Optimierung verwendet werden kann, um zu einer Lösung zu gelangen, welche die notwendigen Bedingungen befriedigt. Diese Methode eignet sich somit als zweiter Teil eines Optimierverfahrens, z.B. als zweiter Teil zum Abstieg im Funktionenraum, welcher erfahrungsgemäß mit der Annäherung an das gesuchte Optimum immer schlechter konvergiert.

Bezeichnet man mit  $\bar{\underline{x}}(t)$  und  $\bar{\underline{p}}(t)$  den Zustandsvektor bzw. den adjungierten Vektor, der zu einem vorgegebenen Entscheidungsvektor  $\underline{u}(t)$  entsprechend den Differentialgleichungen (4.1-8) und (4.1-9) gehört, dann minimiert man bei der Min-H-Methode durch geeignete Wahl von  $\underline{u}(t)$  die Hamiltonfunktion, d.h.

$$H(\bar{\underline{p}}(t), \bar{\underline{x}}(t), \underline{u}(t)) \stackrel{!}{=} \text{Min} \quad (4.2-23)$$

Das Ergebnis dieser Minimierung sei mit  $\tilde{\underline{u}}(t)$  benannt. Die Erfahrung hat jedoch gezeigt [39], daß Oszillationen und Divergenzen auftreten können, wenn man mit dem Steuervektor  $\tilde{\underline{u}}(t)$  die Rechnung fortsetzt. Daher benutzt man für die nächste Iteration

$$\underline{u}(t)_{\text{neu}} = \underline{u}(t)_{\text{alt}} + \epsilon (\tilde{\underline{u}}(t) - \underline{u}(t)_{\text{alt}}) \quad (4.2-24)$$

Für  $\epsilon$  wird der Wert 0.5 empfohlen.

#### 4.2.5 Hill-Climbing an Parametern [40]

Bei dieser Methode ersetzt man das eigentliche Variationsproblem mit seinen unendlich vielen Freiheitsgraden durch ein Problem mit endlich vielen Freiheitsgraden. Ein derartiges Vorgehen mag fragwürdig erscheinen, jedoch sollte man sich vergegenwärtigen, daß bei einer numerischen Lösung der Euler-Lagrangeschen Gleichungen im Grunde nichts anderes geschieht.

Für die Funktion  $\underline{u}(t)$  wird eine geeignete Struktur angenommen, z.B. ein Satz orthogonaler Polynome oder die Potenzreihe

$$\underline{u}(t) = \underline{a}_0 + \underline{a}_1 t + \underline{a}_2 t^2 + \dots + \underline{a}_p t^p \quad (4.2-25)$$

und dann werden mit Hilfe einer geeigneten Optimiermethode die Parameter  $\underline{a}_0, \underline{a}_1, \underline{a}_2, \dots, \underline{a}_p$  so bestimmt, daß  $\theta$  ein Minimum wird. Um sicherzustellen, daß zum Zeitpunkt  $\theta$  der geforderte Endzustand erreicht wird, d.h.  $\underline{x}(\theta) = \underline{x}_\theta$  ist, minimiert man zweckmäßigerweise nicht  $\theta$ , sondern die modifizierte Zielfunktion

$$\tilde{F} = \theta + \frac{1}{2} (\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta)^T \underline{D}(\underline{x}(\theta) - \underline{x}_\theta) \quad (4.2-26)$$

$\underline{D}$  steht für eine Diagonalmatrix mit positiven Diagonalelementen, die den Abstand des vorhandenen Endwertes  $\underline{x}(\theta)$  zum geforderten Endwert  $\underline{x}_\theta$  gewichtet.

Die Methode setzt voraus, daß man die Struktur der Lösung  $\underline{u}^*(t)$  sinnvoll festlegt. Der Ansatz (4.2-25) ist z.B. ungeeignet, einen unstetigen Verlauf wiederzugeben. Aufgrund physikalischer Gegebenheiten ist man jedoch oft in der Lage, für  $\underline{u}^*(t)$  einen sinnvollen Ansatz zu machen. Die Methode selbst ist einfach und gestattet ohne große Schwierigkeiten die Berücksichtigung der Grenzen  $\underline{u}_{\min} \leq \underline{u}(t) \leq \underline{u}_{\max}$ . Als Algorithmus ist folgender Ablauf denkbar:

- 1.) Wähle Startwerte für die Parameter  $\underline{a}_0, \underline{a}_1, \dots, \underline{a}_p$ .
- 2.) Kontrolliere, ob  $\underline{u}(t) = \underline{a}_0 + \underline{a}_1 t + \underline{a}_2 t^2 + \dots + \underline{a}_p t^p$  eine der Grenzen  $\underline{u}_{\min} \leq \underline{u}(t) \leq \underline{u}_{\max}$  verletzt. Immer wenn eine der Grenzen verletzt wird, setze die entsprechende Komponente von  $\underline{u}(t)$  gleich der verletzten Grenze, um eine zulässige Steuerfunktion  $\underline{u}(t)$  zu erhalten.
- 3.) Integriere für die zulässige Steuerfunktion  $\underline{u}(t)$  das Differentialgleichungssystem  $\dot{\underline{x}}(t) = \underline{f}(\underline{x}(t), \underline{u}(t))$  von  $t = 0$  und  $\underline{x}(0) = \underline{x}_0$  bis zu einem vorgegebenen Endzeitpunkt  $t = t_f$ .
- 4.) Ermittle im Intervall  $< 0, t_f >$  das absolute Minimum von

$$\hat{F}(t) = t + \frac{1}{2} (\underline{x}(t) - \underline{x}_0)^T \underline{D}(\underline{x}(t) - \underline{x}_0) \quad (4.2-27)$$

und betrachte es als den zu den Parametern  $\underline{a}_0, \underline{a}_1, \dots, \underline{a}_p$  gehörigen Funktionswert für eine Optimierungsmethode.

- 5.) Verbessere die Parameter  $\underline{a}_0, \underline{a}_1, \dots, \underline{a}_p$  mit Hilfe einer geeigneten Optimierungsmethode.
- 6.) Wenn das (noch zu spezifizierende) Abbruchkriterium nicht erfüllt ist, wiederhole das Verfahren von Schritt 2.) an.

Auch die Bedingung  $\hat{F}(t) = 0$  (vgl. Gl. (4.2-27)) ist als Abbruch für die Integration denkbar. Jedoch nimmt mit der Zahl

- 1) Die Zeit  $t_f$  sollte nicht kleiner als die Einschwingzeit gewählt werden, d.h. nicht kleiner als die Zeit, die das System benötigt, um von  $\underline{x}_0$  nach  $\underline{x}_0$  zu gelangen (genauer gesagt, bis  $(\underline{x}(t_f) - \underline{x}_0)^T \underline{D}(\underline{x}(t_f) - \underline{x}_0) \leq \epsilon$  ist), wenn die konstante Steuerfunktion  $\underline{u}(t) = \underline{u}_0$  benutzt wird, wobei  $\underline{f}(\underline{x}_0, \underline{u}_0) = \underline{0}$ .
- 2) Da keine Ableitungen verfügbar sind, sollte man eine Suchmethode wählen, z.B. die NELDER-MEAD-Methode [41].

der Variablen  $x_i$  die Wahrscheinlichkeit für die Existenz mehrerer lokaler Minima von  $\hat{F}(t)$  zu. Ein Abbruch entsprechend der Bedingung  $\hat{F}(t) = 0$  kann daher verfrüht sein, und es ist notwendig, in dem abgeschlossenen Intervall  $\langle 0, t_f \rangle$  zu suchen, welches das absolute Minimum enthält, solange eine Verbesserung gegenüber dem normalen Einschwingvorgang überhaupt möglich ist. Die Suche des absoluten Minimums erfordert bei einer numerischen Integration des Differentialgleichungssystems  $\dot{\underline{x}}(t) = \underline{f}(\underline{x}(t), \underline{u}(t))$  bei jedem Integrationsschritt lediglich eine zusätzliche Abfrage. Die für die Integration benutzte Schrittweite bestimmt hierbei die Genauigkeit der Lage des absoluten Minimums.

## 5. Optimale Trajektorien der Rührkesselreaktoren

Die im Abschnitt 4 aufgezeigten Methoden werden benutzt, um für die im Abschnitt 3 aufgestellten Modellgleichungen zeitoptimale Steuerfunktionen und zugehörige Zustandsänderungen zu berechnen. Die erhaltenen theoretischen Ergebnisse werden anschließend mit Versuchsergebnissen verglichen, die sich bei Anwendung der berechneten zeitoptimalen Steuerfunktionen ergeben.

### 5.1 Elektrisch beheizter Rührkessel

Für die in der Tabelle 5.1-1 zusammengestellten Zustandsänderungen sollen die zeitoptimalen Steuerfunktionen und die zugehörigen Trajektorien zunächst berechnet und anschließend durch das Experiment bestätigt werden. Die elektrische Heizleistung wird dabei für  $\tau = 333 \text{ sec}$  auf den Bereich  $20 \text{ W} \leq N(t) \leq 240 \text{ W}$  und für  $\tau = 1000 \text{ sec}$  auf den Bereich  $10 \text{ W} \leq N(t) \leq 90 \text{ W}$  beschränkt.

#### 5.1.1 Ermittlung der zeitoptimalen Steuerfunktion und der zugehörigen Trajektorien für die Modellgleichungen

##### 5.1.1.1 Aufstellung und Analyse der Hamiltonfunktion [10]

Die Materialbilanz (3.1-1) und die Energiebilanz (3.1-4) lassen sich mit den Abkürzungen

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} \quad 1) \quad \hat{T} = \frac{T}{T_0}$$

---

1) Entspricht dem Restanteil f.

| $\tau = 333 \text{ sec}$                    |                                     |                                     |                                     |
|---------------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| $N = N_{\min} = 20 \text{ W}$<br>(Punkt A)  |                                     | $N = 130 \text{ W}$<br>(Punkt B)    |                                     |
| $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$                  | $\frac{c_s}{c_o} = 0,62$            | $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$          | $\frac{c_s}{c_o} = 0,39$            |
| $T_o = 24,4 \text{ }^\circ\text{C}$         | $T_s = 29,0 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_o = 24,4 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_s = 54,0 \text{ }^\circ\text{C}$ |
| $N = N_{\max} = 240 \text{ W}$<br>(Punkt C) |                                     | $N = 130 \text{ W}$<br>(Punkt B)    |                                     |
| $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$                  | $\frac{c_s}{c_o} = 0,24$            | $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$          | $\frac{c_s}{c_o} = 0,37$            |
| $T_o = 25,5 \text{ }^\circ\text{C}$         | $T_s = 79,0 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_o = 25,5 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_s = 56,0 \text{ }^\circ\text{C}$ |
| $\tau = 1000 \text{ sec}$                   |                                     |                                     |                                     |
| $N = N_{\min} = 10 \text{ W}$<br>(Punkt A)  |                                     | $N = 50 \text{ W}$<br>(Punkt B)     |                                     |
| $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$                  | $\frac{c_s}{c_o} = 0,41$            | $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$          | $\frac{c_s}{c_o} = 0,22$            |
| $T_o = 24,5 \text{ }^\circ\text{C}$         | $T_s = 31,3 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_o = 24,5 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_s = 58,6 \text{ }^\circ\text{C}$ |
| $N = N_{\max} = 90 \text{ W}$<br>(Punkt C)  |                                     | $N = 50 \text{ W}$<br>(Punkt B)     |                                     |
| $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$                  | $\frac{c_s}{c_o} = 0,125$           | $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$          | $\frac{c_s}{c_o} = 0,22$            |
| $T_o = 24,5 \text{ }^\circ\text{C}$         | $T_s = 85,9 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_o = 24,5 \text{ }^\circ\text{C}$ | $T_s = 58,6$                        |

Tabelle 5.1-I Zusammenstellung der Zustandsänderungen für den elektrisch beheizten Rührkessel

$$\hat{r} = \frac{\tau \cdot r}{c_o} \quad \hat{t} = \frac{t}{\tau} \quad (5.1-1)$$

$$\Delta T_{ad} = \frac{(-\Delta H_R) c_o}{\int c_p} \quad \hat{N} = \frac{N \tau}{V' \int c_p T_o}$$

$$V' = V + \Delta V \quad (\text{vgl. Gl. (3.1-6)})$$

dimensionslos schreiben:

$$\frac{d\hat{c}}{d\hat{t}} = (1 - \hat{c}) - \hat{r} \quad (5.1-2a)$$

$$\frac{d\hat{T}}{d\hat{t}} = \frac{V}{V'} (1 - \hat{T}) + \frac{V}{V'} \frac{\Delta T_{ad}}{T_o} \hat{r} + \hat{N} \quad (5.1-2b)$$

Kennzeichnet man mit dem Index s die stationären Werte der Variablen in den Gleichungen (5.1-2) für den angestrebten Betriebspunkt und mit

$$x_1 = \hat{c} - \hat{c}_s \quad (5.1-3a)$$

$$x_2 = \hat{T} - \hat{T}_s \quad (5.1-3b)$$

$$\Delta \hat{r} = \hat{r} - \hat{r}_s \quad (5.1-3c)$$

$$u = \hat{N} - \hat{N}_s \quad (5.1-3d)$$

---

1) Entspricht der ersten Damköhlerschen Kennzahl, DaI.

die Abweichungen der Variablen von diesen, dann läßt sich das Differentialgleichungssystem (5.1-2) vereinfachen zu

$$\frac{dx_1}{d\hat{t}} = \dot{x}_1 = -x_1 - \Delta \hat{r} = f_1(x_1, x_2) \quad (5.1-4a)$$

$$\frac{dx_2}{d\hat{t}} = \dot{x}_2 = -ax_2 + b\Delta \hat{r} + u = f_2(x_1, x_2, u) \quad (5.1-4b)$$

mit

$$a = \frac{V}{V'}, \quad b = \frac{V}{V'} \frac{\Delta T_{ad}}{T_0} \quad (5.1-4c)$$

Diese beiden Differentialgleichungen sind über die dimensionslose "Reaktionsgeschwindigkeit"

$$\Delta \hat{r}(x_1, x_2) = \tau_{k_0 c_0} \left[ e^{-\frac{\hat{E}}{R} \cdot \frac{1}{\hat{T}_s + x_2}} \cdot (\hat{c}_s + x_1)^2 - e^{-\frac{\hat{E}}{R \hat{T}_s}} \hat{c}_s^2 \right] \quad (5.1-5)$$

gekoppelt, wobei  $\hat{E} = \frac{E}{T_0}$  ist.

Die Gleichungen für die adjungierten Variablen  $p_i$  lauten allgemein (vgl. Gl. (4.1-5))

$$\frac{dp_i}{d\hat{t}} = - \sum_{j=1}^n p_j \frac{\partial f_j}{\partial x_i} \quad (5.1-6)$$

bzw. für vorliegenden Fall

$$\frac{dp_1}{dt} = \dot{p}_1 = p_1 \left( 1 + \frac{\partial \Delta \hat{r}}{\partial x_1} \right) - p_2 b \frac{\partial \Delta \hat{r}}{\partial x_1} \quad (5.1-7a)$$

$$\frac{\partial p_2}{dt} = \dot{p}_2 = p_1 \frac{\partial \Delta \hat{r}}{\partial x_2} + p_2 (a - b \frac{\partial \Delta \hat{r}}{\partial x_2}) \quad (5.1-7b)$$

mit

$$\frac{\partial \Delta \hat{r}}{\partial x_1} = \tau k c_0 e^{-\frac{\hat{E}}{R}} \cdot \frac{1}{\hat{T}_s + x_2} \cdot 2(\hat{c}_s + x_1) \quad (5.1-8a)$$

$$\frac{\partial \Delta r}{\partial x_2} = \tau k c_0 e^{-\frac{\hat{E}}{R}} \cdot \frac{1}{\hat{T}_s + x_2} \cdot \frac{\hat{E}}{R} \frac{1}{(\hat{T}_s + x_2)^2} (\hat{c}_s + x_1)^2 \quad (5.1-8b)$$

Bei der Ermittlung der Zeitverläufe der Zustandsvariablen  $x_i(\hat{t})$  und der adjungierten Variablen  $p_i(\hat{t})$  sind folgende Randbedingungen zu berücksichtigen:

$$x_1(0) = x_{10} \quad x_1(\theta) = 0 \quad (5.1-9a)$$

$$x_2(0) = x_{20} \quad x_2(\theta) = 0 \quad (5.1-9b)$$

$$p_1(0) = \text{nicht spezifiziert} \quad p_1(\theta) = \text{nicht spezifiziert} \quad (5.1-9c)$$

$$p_2(0) = \text{nicht spezifiziert} \quad p_2(\theta) = \text{nicht spezifiziert} \quad (5.1-9d)$$

Die Zustandsvariable  $x_1$  ist nach unten und oben hin beschränkt, d.h.  $0 \leq x_1(\hat{t}) \leq 1$ , und für die Steuervariable  $u$  gilt entsprechend Gleichung (4.1-4)  $u_{\min} \leq u(\hat{t}) \leq u_{\max}$ , mit  $u_{\min} < 0$  und  $u_{\max} > 0$ . Da  $F \equiv 0$ , es sich also um eine zeitoptimale Zustandsänderung handelt, gilt entsprechend den Ausführungen des Abschnitts 4.1 für die Hamiltonfunktion (vgl. Gl. (4.1-7) und Gl. (4.1-13)):

$$H(\underline{x}, \underline{p}, u) = 1 + p_1 f_1 + p_2 f_2 \stackrel{!}{=} \text{Min} = 0 \quad (5.1-10a)$$

bzw. ausführlicher

$$\text{Min}_u [H(\underline{x}, \underline{p}, u) = 1 + p_1(-x_1 - \Delta \hat{r}) + p_2(-ax_2 + b\Delta \hat{r} + u)] \equiv 0 \quad (5.1-10b)$$

Man findet mit Hilfe der Gleichung (5.1-10b) als Vorschrift für die Steuervariable

$$\begin{aligned} u &= u_{\min} \quad \text{wenn} \quad p_2 > 0 \\ u &= u_{\max} \quad \text{wenn} \quad p_2 < 0 \end{aligned} \quad (5.1-11)$$

d.h. die Steuervorschrift hängt allein vom Vorzeichen der adjungierten Variablen  $p_2$  ab. Nur für  $p_2 = 0$  ist eine von der sogenannten Relais- oder "Bang-Bang"-Steuerung abweichende Steuerung möglich. Nimmt man an, daß im Zeitintervall  $\hat{t}_1 \leq \hat{t} \leq \hat{t}_2$   $p_2(\hat{t}) \equiv 0$  ist, dann muß  $\dot{p}_2(\hat{t})$  ebenfalls gleich Null sein und Gleichung (5.1-7b) verlangt somit  $p_1 \frac{\partial \Delta \hat{r}}{\partial x_2} = 0$ . Wenn jedoch  $p_1$  ebenfalls Null wäre, dann würde  $H = 1$  sein und die Gleichung (5.1-10b) wäre nicht mehr erfüllt, so daß als

notwendige Bedingung für eine von der "Bang-Bang"-Steuerung abweichende Kontrolle

$$\frac{\partial \Delta \hat{r}}{\partial x_2} = 0 \quad (5.1-12a)$$

bzw.

$$\frac{\partial r}{\partial T} = 0 \quad (5.1-12b)$$

ist. Bei irreversiblen und endothermen Reaktionen ist jedoch  $\partial r / \partial T$  immer positiv, nur bei reversiblen, exothermen Reaktionen kann  $\partial r / \partial T$  negativ werden [42]. Da die vorliegende Reaktion (2.1-1) praktisch irreversibel ist, muß die optimale Steuerung "Bang-Bang"-Charakter haben.

#### 5.1.1.2 Synthese der optimalen Steuerung

Bei Synthese der optimalen Steuerung beginnt man zweckmäßigerweise am Endpunkt [10], d.h. für  $t = \theta$ , wo  $x_1(\theta) = x_2(\theta) = 0$  ist (vgl. Gleichungen (5.1-3)). Mit Hilfe dieser Randwerte und der Vorschrift (5.1-11) führt die Gleichung (5.1-10b) zu

$$p_2(\theta) = - \frac{1}{u(\theta)} = \begin{cases} - \frac{1}{u_{\min}} & \text{für } p_2 > 0 \\ - \frac{1}{u_{\max}} & \text{für } p_2 < 0 \end{cases} \quad (5.1-13)$$

Nimmt man einen Wert für  $p_1(\theta)$  und einen der beiden möglichen Fälle für  $p_2(\theta)$  an (vgl. Gl. (5.1-13)), dann kann man die Gleichung

chungen für  $x_1$ ,  $x_2$ ,  $p_1$  und  $p_2$  von  $\hat{t} = \theta$  aus in Richtung  $t = 0$  integrieren und dabei  $u(\hat{t})$  so wählen, daß  $p_2 u$  stets negativ bleibt, d.h. sobald  $p_2 = 0$  ist, wird von  $u = u_{\min}$  auf  $u = u_{\max}$  bzw. von  $u = u_{\max}$  auf  $u = u_{\min}$  umgeschaltet. Die Integration wird dann abgebrochen, wenn  $x_1(\hat{t}) = x_{10}$  ist; da jedoch dann in der Regel  $x_2(\hat{t}) \neq x_{20}$  ist, wird  $p_1(\theta)$  korrigiert und alle Differentialgleichungen werden erneut rückwärts integriert und dabei  $u(\hat{t})$  stets, wie bereits geschildert, festgelegt. Dieses Verfahren wird so lange fortgesetzt, bis  $x_2(\hat{t}) = x_{20}$  ist. Die Optimierung erfolgt also nach der PONTRJAGIN-Methode (vgl. Abschnitt 4.2.1).

Die Abbildungen 5.1-I, 5.1-II und 5.2-III zeigen Trajektorien für verschiedene Anfangswerte und  $\tau = 333$  sec für die konstanten Steuerfunktionen  $N(\hat{t}) = 20$  W,  $N(\hat{t}) = 130$  W bzw.  $N(\hat{t}) = 240$  W. Sie wurden mit Hilfe eines Analogrechners (Typ EAI, Modell TR 48) ermittelt (vgl. Abb. 3.1-IV). Die Punkte A, B und C kennzeichnen jeweils die stationären Betriebspunkte für  $N = 20$  W,  $N = 130$  W und  $N = 240$  W bei  $c_0 = 0,02$  mol/l und  $T_0 = 25,0$  °C; die gestrichelte Linie ist die Verbindungslinie aller möglicher stationärer Betriebspunkte. Man erkennt, daß in beiden Abbildungen 5.1-I und 5.1-III jeweils nur eine einzige Trajektorie durch den Zielpunkt B geht, der von jedem Punkt der Phasenebene in der kürzesten Zeit erreicht werden soll, z.B. von Punkt A oder B.

Integriert man nun entsprechend der oben geschilderten Synthesemethode von B aus mit  $u(\theta) = u_{\min}$  (entspricht  $N = 20$  W) oder mit  $u(\theta) = u_{\max}$  (entspricht  $N = 240$  W) rückwärts, so wird man entlang der zugehörigen, durch den Punkt B gehenden Trajektorie für  $u(\theta) = u_{\min}$  in die rechts von B liegende Seite und für  $u(\theta) = u_{\max}$  in die links von B liegende Seite der Phasenebene gelangen. Nun hängt es weiter von der Wahl für  $p_1(\theta)$  ab, wann bei dieser Rückwärtsintegration  $p_2 = 0$  wird und man die durch den Punkt B gehende Trajektorie zu verlassen hat. Die optimale Steuerung verlangt dann den anderen Extremwert, und man wird demzufolge von hier aus auf einer zu diesem Extremwert der

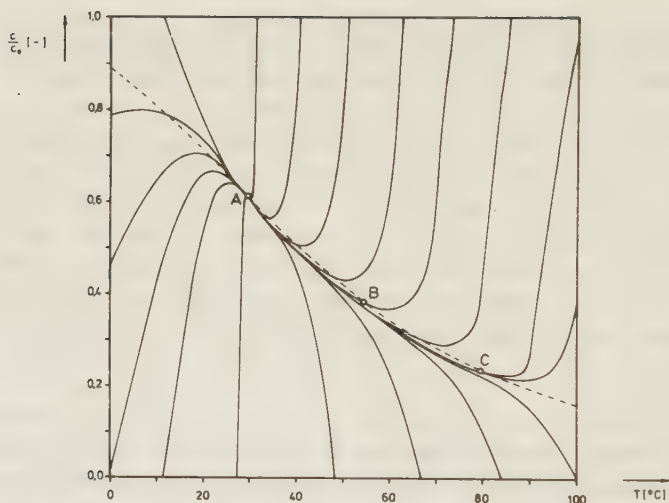


Abb. 5.1-I Phasenebene des elektrisch beheizten Rührkessels für  $\tau = 333$  sec und  $N = 20$  W.

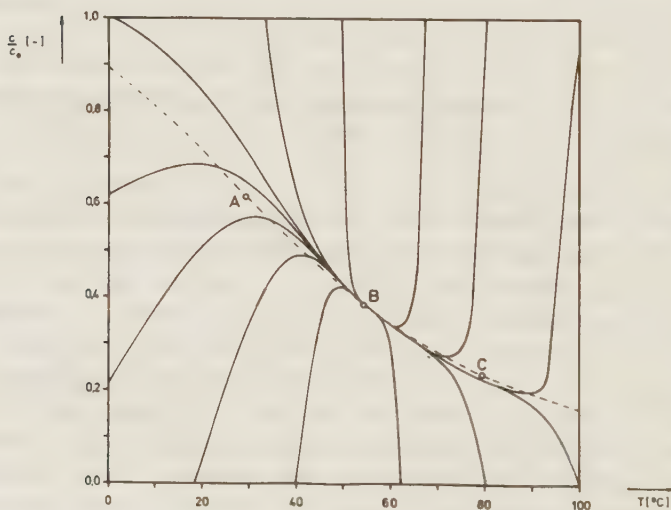


Abb. 5.1-II Phasenebene des elektrisch beheizten Rührkessels für  $\tau = 333$  sec und  $N = 130$  W.

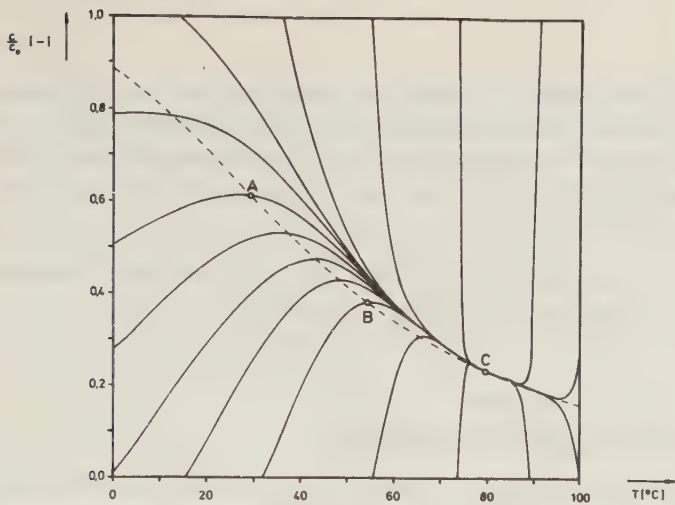


Abb. 5.1-III Phasenebene des elektrisch beheizten Rührkessels für  $\tau = 333$  sec und  $N = 240$  W.

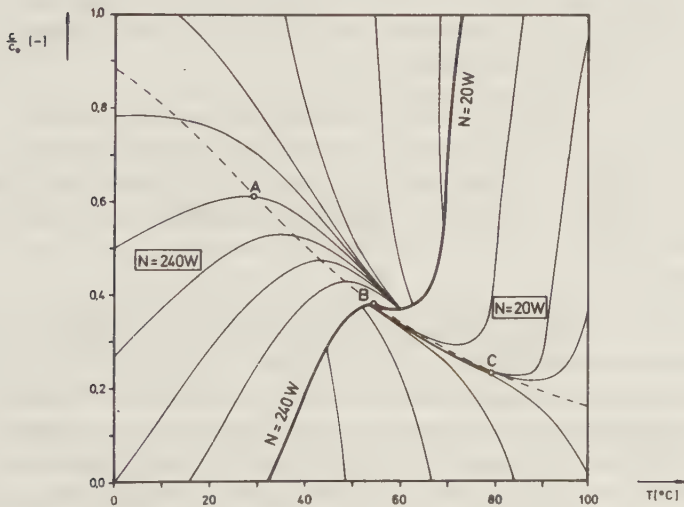


Abb. 5.1-IV Zeitoptimale Trajektorien des elektrisch beheizten Rührkessels bezüglich des Betriebspunktes B ( $N = 130$  W) für  $\tau = 333$  sec und  $20 \text{ W} \leq N \leq 240 \text{ W}$ .

Steuerung gehörenden Trajektorie rückwärts laufen: Die zeitoptimale Steuerung kann also dadurch synthetisiert werden, daß man die beiden Phasenebenen für die beiden Extremlagen (Abb. 5.1-I und 5.1-III) der Steuerung zusammenfügt. Die Abb. 5.1-IV zeigt diese Synthese.

Für von  $\tau = 333$  sec abweichende Verweilzeiten führen entsprechende Überlegungen zu gleichen Ergebnissen.

#### 5.1.1.3 Ermittlung der Schaltzeiten

Die Abb. 5.1-V zeigt die prinzipiellen Verläufe der Steuerfunktion  $u(t)$ . Im Fall a liegt der Anfangszustand in der linken Hälfte der Abb. 5.1-IV. Die optimale Steuerung verlangt zunächst für die Zeit  $t_1$  die maximale Heizleistung ( $N = 240$  W bei  $\tau = 333$  sec), danach für die Zeitdauer  $(t_2 - t_1)$  die minimale Heizleistung ( $N = 20$  W für  $\tau = 333$  sec) und anschließend für  $t > t_2$  die zu dem Betriebspunkt B gehörige Heizleistung ( $N = 130$  W für  $\tau = 333$  sec).

Im Fall b befindet sich der Anfangszustand in der rechten Hälfte der Abb. 5.1-IV. Eine zeitoptimale Steuerung erfordert für die Zeitdauer  $t_1$  zunächst die minimale Heizleistung, dann für die Zeitdauer  $(t_2 - t_1)$  die maximale Heizleistung und anschließend für  $t > t_2$  die zu dem Betriebspunkt B gehörige Heizleistung.

Für zunächst beliebig gewählte Schaltzeitpunkte  $t_1$  und  $t_2$  werden die Modellgleichungen (3.1-1) und (3.1-4) mit Hilfe des Analogrechners (vgl. Rechenschaltung Abb. 3.1-IV) repetierend gelöst, d.h. so schnell wiederholt durchgerechnet (Rechenzeit 20 - 50 msec), daß auf einem x-y-Oszillographen (Typ Tektronix, Modell 561A) ein stehendes Bild entsteht. Die in der Abb. 5.1-V dargestellten Steuerfunktionen werden durch die in Abb. 5.1-VI gezeigte Rechenschaltung erzeugt, deren Ausgang die in Abb. 3.1-IV dargestellte, vom Umkehrver-

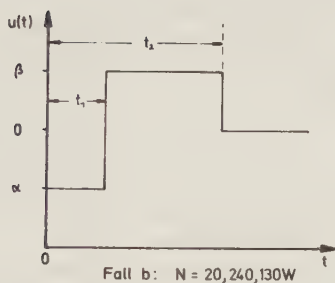
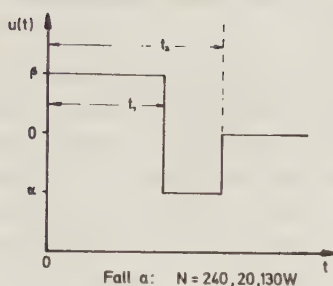


Abb. 5.1-V Prinzipiell mögliche Verläufe der optimalen Steuerfunktion  $u(t)$ .

verstärker gelieferte (0,01N)-Spannung ersetzt und zu dem auf 0,5621 eingestellten Potentiometer führt.

In der Rechenschaltung für die optimale Steuerfunktion (Abb. 5.1-V, Fall a) werden nun zur Erzeugung der zeitoptimalen Steuerfunktion für den Übergang vom Punkt A zum Punkt B durch systematisches Verändern der an -10V liegenden Potentiometer die Schaltzeiten  $t_1$  und  $t_2$  so lange variiert, bis auf dem Oszillographen das in der Abb. 5.1-VII dargestellte Bild entsteht, welches dem zeitoptimalen Übergang von Punkt A nach Punkt B entspricht. Wenn die beiden Schaltzeiten nicht opti-

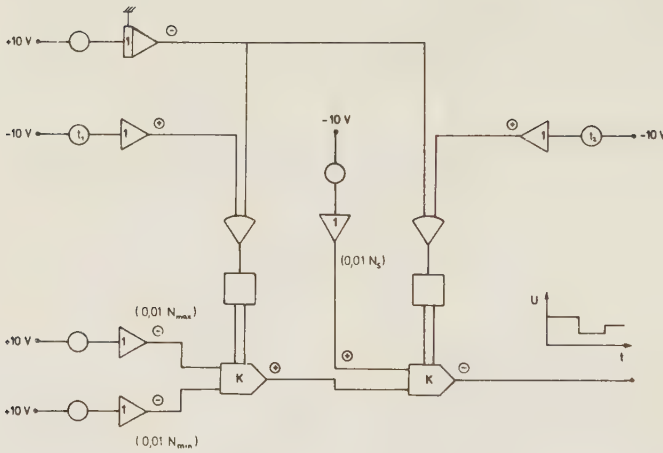


Abb. 5.1-VI Rechenschaltung zur Erzeugung der optimalen Steuerfunktion.

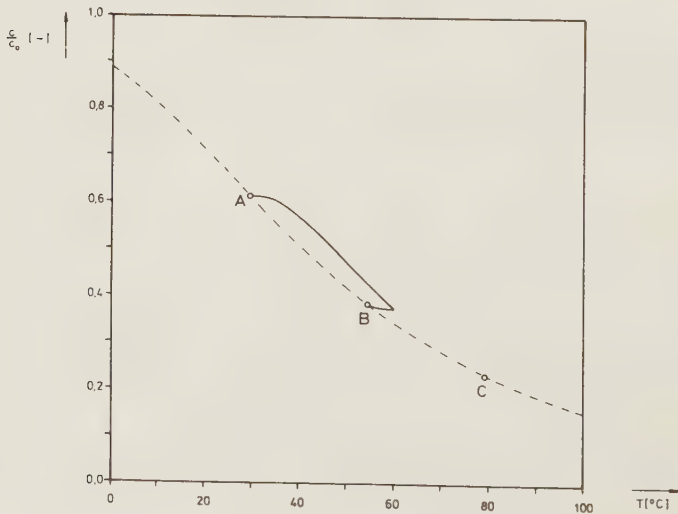


Abb. 5.1-VII Simulierte zeitoptimale Trajektorie für den Übergang von Punkt A nach Punkt B für  $\tau = 333 \text{ sec}$ .

mal gewählt sind, weist die zugehörige Trajektorie im Gegensatz zur optimalen Trajektorie (vgl. Abb. 5.1-VII) zwei Knickpunkte auf.

Für den Übergang vom Punkt C zum Punkt B sowie für die Übergänge von den Punkten A und C nach Punkt B für eine Verweilzeit von  $\tau = 1000$  sec werden in analoger Weise die Schaltzeiten  $t_1$  und  $t_2$  bestimmt. Die Ergebnisse für die in der Tabelle 5.1-I angegebenen Anfangs- bzw. Endzustände sind in der Tabelle 5.1-II zusammengestellt.

| Übergang                      | $\tau = 333$ sec |             | $\tau = 1000$ sec |             |
|-------------------------------|------------------|-------------|-------------------|-------------|
|                               | $t_1$ [sec]      | $t_2$ [sec] | $t_1$ [sec]       | $t_2$ [sec] |
| Punkt A $\rightarrow$ Punkt B | 350              | 407         | 875               | 932         |
| Punkt C $\rightarrow$ Punkt B | 317              | 370         | 899               | 1007        |

Tabelle 5.1-II Zusammenstellung der Schaltzeiten für die zeitoptimale Steuerung des elektrisch beheizten Rührkessels für die in der Tabelle 5.1-I angegebenen Anfangs- bzw. Endzustände.

### 5.1.2 Vergleich simulierter und experimenteller Ergebnisse

Es wird versucht, den elektrisch beheizten Rührkessel (vgl. Abb. 2.2-I und Abb. 2.4-I) mit den durch die Tabelle 5.1-II und die Abb. 5.1-V definierten Steuerfunktionen (zeitlicher Verlauf der zugeführten elektrischen Energie) in der kürzesten Zeit von bestimmten Anfangszuständen zu dem jeweils geforderten Endzustand (vgl. Tabelle 5.1-I) zu überführen.

Die Abb. 5.1-VIII zeigt den experimentell ermittelten Verlauf der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeitoptimalen

Übergang vom Punkt A zum Punkt B für  $\tau = 333 \text{ sec}$  (Zulauf-temperatur  $T_0 = 24,4^\circ \text{C}$ ). Der Temperaturverlauf kann direkt mit dem theoretisch vorhergesagten Temperaturverlauf verglichen werden, der als durchgezogene Linie in der Abb. 5.1-IX dargestellt ist. Man kann die Übereinstimmung der Temperaturverläufe als praktisch vollkommen bezeichnen.

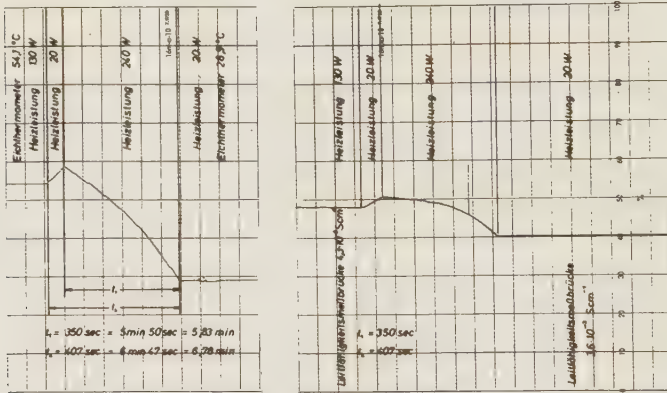


Abb. 5.1-VIII Meßschieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeit-optimalen Übergang von Punkt A nach Punkt B für  $\tau = 333 \text{ sec}$ .

Der Verlauf der Leitfähigkeit kann mit Hilfe der Eichkurve<sup>1)</sup> in einem  $c(t)$ -Verlauf umgerechnet werden. Die Aufzeichnung der Leitfähigkeit durch den Kompensationsschreiber ist nur proportional und nicht identisch der Anzeige der Leitfähigkeitsmeßbrücke, da diese einen Stromausgang aufweist, jener aber eine Spannung verlangt.

1) Deponiert im ITCI.

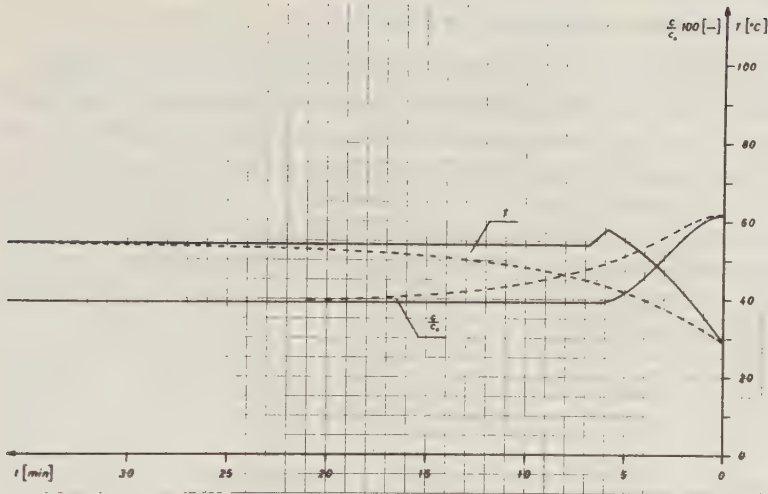


Abb. 5.1-IX Simulierter Verlauf der Temperatur und der Konzentration für den Übergang von Punkt A nach Punkt B für  $\tau = 333$  sec.

Für eine Temperatur von  $T = 28,9$  °C und eine Leitfähigkeit von  $\kappa = 3,6 \cdot 10^{-3}$  S/cm folgt mit Hilfe der Eichkurve

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_{\infty}}{\kappa_0 - \kappa_{\infty}} = \frac{3,6 - 1,75}{4,75 - 1,75} = \frac{1,85}{3,0} = 0,616$$

und für  $T = 54,1$  °C und  $\kappa = 4,22 \cdot 10^{-3}$  S/cm

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_{\infty}}{\kappa_0 - \kappa_{\infty}} = \frac{4,3 - 2,7}{6,8 - 2,7} = \frac{1,6}{4,1} = 0,39$$

Die Übereinstimmung zwischen diesem experimentell bestimmten Anfangs- bzw. Endwert für die Konzentration mit den theore-

tisch erwarteten Werten  $\hat{c} = 0,62$  bzw.  $\hat{c} = 0,39$  kann ebenfalls als vollkommen bezeichnet werden.

Um einen Vergleich mit nichtoptimalen Trajektorien zu ermöglichen, läßt man den elektrisch beheizten Rührkessel vom Punkt A aus zum Punkt B normal einschwingen, d.h. zum Zeitpunkt  $t = 0$  wird die Heizleistung von  $N = 20 \text{ W}$  (entspricht  $u = u_{\min}$ ) auf  $N = 130 \text{ W}$  (entspricht  $u = 0$ ) umgeschaltet. Den experimentell ermittelten Verlauf der Temperatur und der Leitfähigkeit zeigen die Abbildungen 5.1-X und 5.1-XI. Die zugehörigen theoretischen Verläufe sind durch die gestrichelten Kurven in der Abb. 5.1-IX dargestellt.

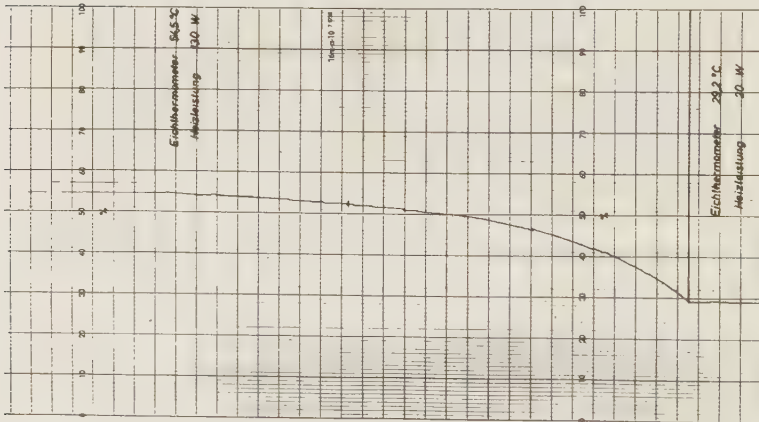


Abb. 5.1-X Meßschrieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur für den normalen Übergang von Punkt A nach Punkt B für  $\tau = 333 \text{ sec}$ .

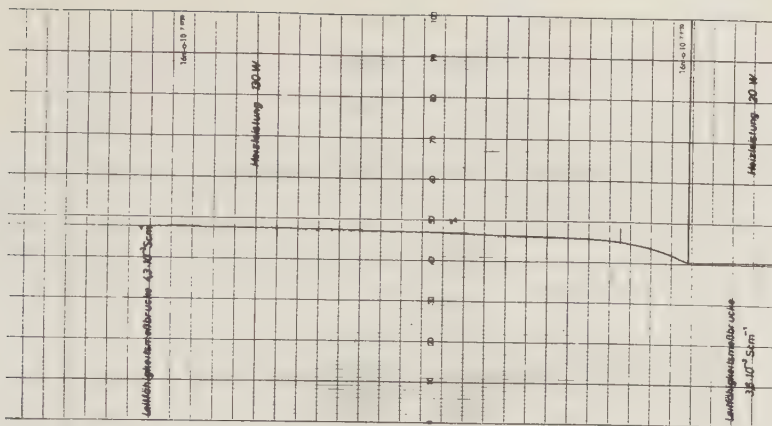


Abb. 5.1-XI Meßschieb des experimentellen Verlaufs der Leitfähigkeit für den normalen Einschwingungsvorgang von Punkt A nach Punkt B für  $\tau = 333$  sec.

Vergleicht man die Abb. 5.1-VIII mit der Abb. 5.1-X, so stellt man fest, daß man für einen zeitoptimalen Übergang nur  $407 \text{ sec} \hat{=} 6 \text{ min } 47 \text{ sec} \hat{=} 6,78 \text{ min}$  benötigt, dagegen aber das normale Einschwingen  $24,5 \text{ min}$  dauert, also rund viermal solange.

Die Abb. 5.1-XII zeigt den experimentell ermittelten Verlauf der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeitoptimalen Übergang vom Punkt C zum Punkt B für  $\tau = 333 \text{ sec}$  (Zulauftemperatur  $T_0 = 25,5^\circ \text{C}$ ). Die entsprechenden simulierten Verläufe sind als durchgezogene Linien in der Abb. 5.1-XIII dargestellt. Die Übereinstimmung des theoretischen und praktischen Temperaturverlaufs ist auf  $1^\circ \text{C}$  genau. Die Umrechnung der gemessenen Leitfähigkeiten auf Konzentrationen ergibt für  $T = 79,0^\circ \text{C}$  und  $\kappa = 5,0 \cdot 10^{-6} \text{ S cm}^{-1}$

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_\infty}{\kappa_0 - \kappa_\infty} = \frac{5,0 - 3,7}{8,85 - 3,7} = \frac{1,3}{5,15} = 0,252$$

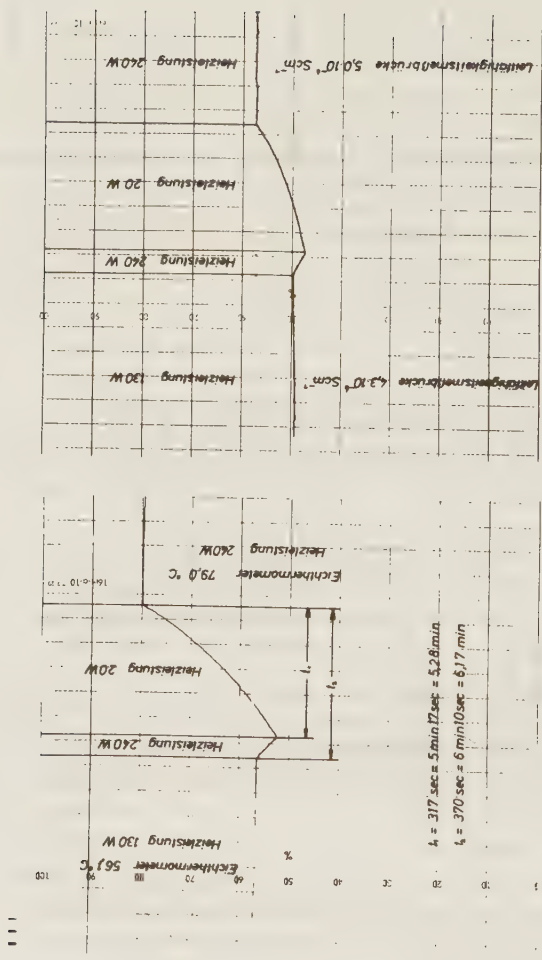


Abb. 5.1-XII Meßschieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeitoptimalen Übergang von Punkt C nach Punkt B für  $t = 333 \text{ sec}$ .

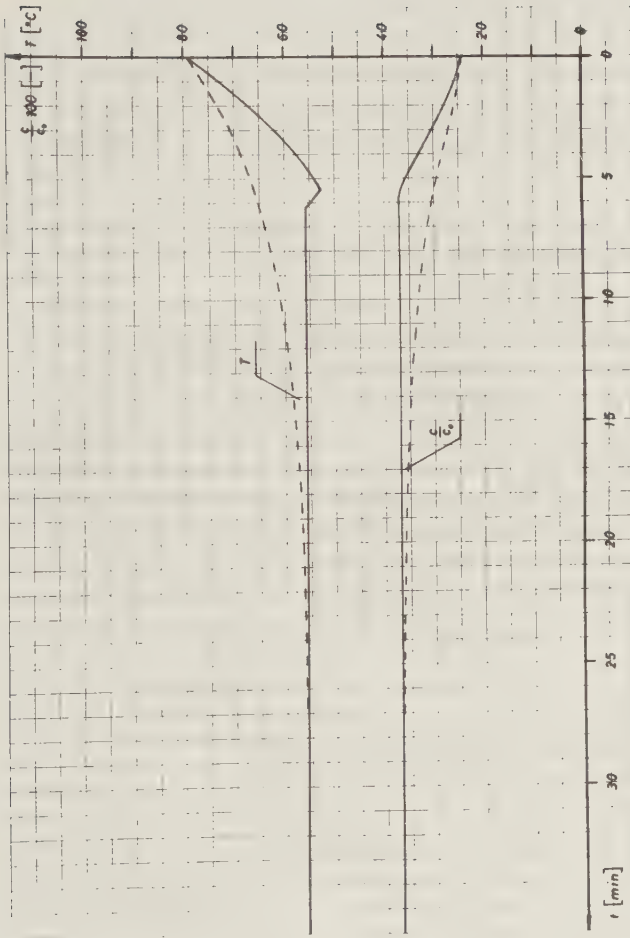


Abb. 5.1-XIII Simulierter Verlauf der Temperatur und der Konzentration für den Übergang von Punkt A nach Punkt B für  $\tau = 333$  sec.

bzw. für  $T = 56,1^{\circ}\text{C}$  und  $\alpha = 4,3 \cdot 10^{-6} \text{ S cm}^{-1}$

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\alpha - \alpha_{\infty}}{\alpha_0 - \alpha_{\infty}} = \frac{4,3 - 2,8}{6,95 - 2,8} = \frac{1,5}{4,15} = 0,362$$

Die Übereinstimmung mit den entsprechenden theoretischen Werten  $\hat{c} = 0,24$  bzw.  $\hat{c} = 0,37$  ist nicht so gut wie beim Übergang von Punkt A nach Punkt B, dürfte jedoch im Rahmen der Meßgenauigkeit liegen.

Auch für dieses Beispiel benötigt der zeitoptimale Übergang nur rund  $1/4$  der normalen Einschwingzeit.

In der Abb. 5.1-XIV ist der experimentell ermittelte Verlauf der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeitoptimalen Übergang vom Punkt A zum Punkt B für  $\tau = 1000 \text{ sec}$  (Zulauftemperatur  $T_0 = 24,5^{\circ}\text{C}$ ) dargestellt. Die Abb. 5.1-XV zeigt die entsprechenden theoretischen Verläufe als durchgezogene Linien. Die Übereinstimmung des theoretischen und praktischen Temperaturverlaufs kann auch bei dieser Verweilzeit als gut bezeichnet werden, da die Abweichungen kleiner als  $0,5^{\circ}\text{C}$  sind. Die gemessenen Leitfähigkeiten - denen bei diesem Versuch eine starke Störung überlagert ist - wird wieder für den Anfangs- und Endzustand umgerechnet. Für  $T = 31,9^{\circ}\text{C}$  und  $\alpha = 3,1 \cdot 10^{-6} \text{ S cm}^{-1}$  ergibt sich

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\alpha - \alpha_{\infty}}{\alpha_0 - \alpha_{\infty}} = \frac{3,1 - 1,9}{5,0 - 1,9} = \frac{1,2}{3,1} = 0,387$$

für  $T = 58,0^{\circ}\text{C}$  und  $\alpha = 3,9 \cdot 10^{-6} \text{ S cm}^{-1}$

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\alpha - \alpha_{\infty}}{\alpha_0 - \alpha_{\infty}} = \frac{3,9 - 2,9}{7,1 - 2,9} = \frac{1,0}{4,2} = 0,238$$

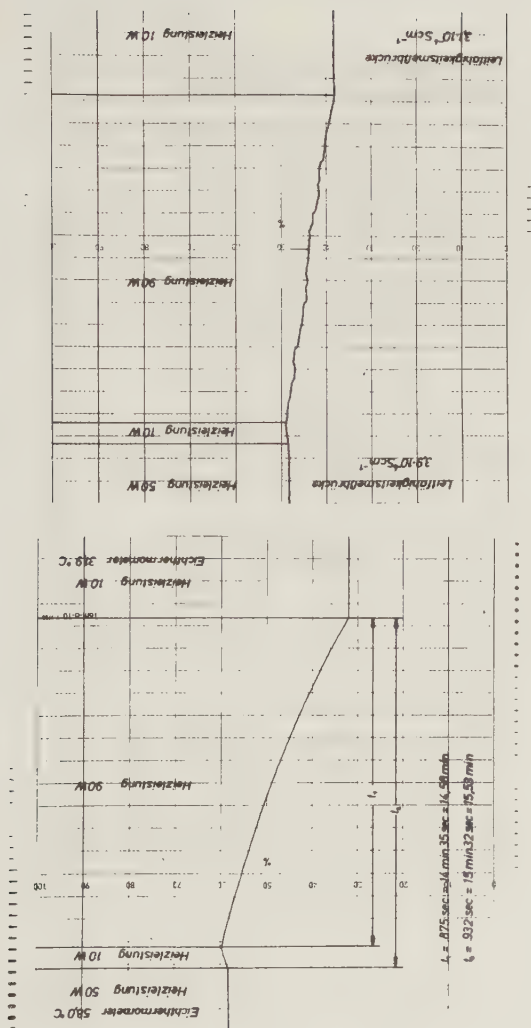


Abb. 5.1-XIV Meßschieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeitoptimalen Übergang von Punkt A nach Punkt B für  $t = 1000 \text{ sec}$ .

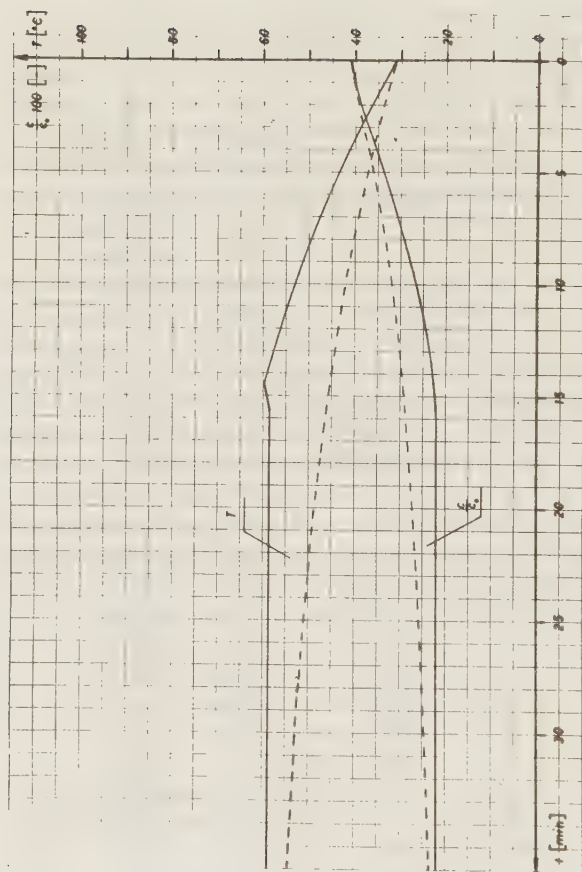


Abb. 5.1-XV Simulierter Verlauf der Temperatur und der Konzentration für den Übergang von Punkt A nach Punkt B für  $\tau = 1000$  sec.

d.h. die Abweichungen von den theoretischen Werten (für diese Temperaturen)  $\hat{c} = 0,4$  und  $\hat{c} = 0,23$  liegen auch hier im Rahmen der Meßgenauigkeit.

Die Abb. 5.1-XVI zeigt den experimentell ermittelten Verlauf der Temperatur und der Leitfähigkeit für den Übergang vom Punkt C zum Punkt B für  $\tau = 1000$  sec (Zulauftemperatur  $T_0 = 24,5$  °C). Die durchgezogenen Linien in der Abb. 5.1-XVII stellen den entsprechenden theoretischen Verlauf der Temperatur bzw. der Konzentration dar. Die Abweichung zwischen experimentellen und theoretischen Temperaturverlauf beträgt maximal  $2,5$  °C. Die gemessenen Leitfähigkeiten werden wieder für den Anfangs- und Endzustand umgerechnet. Für  $T = 83,7$  °C und  $\kappa = 4,7 \cdot 10^{-6}$  S cm<sup>-1</sup> ergibt sich

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_{\infty}}{\kappa_0 - \kappa_{\infty}} = \frac{4,7 - 3,9}{9,25 - 3,9} = \frac{0,8}{5,35} = 0,15$$

für  $T = 61,0$  °C und  $\kappa = 3,9 \cdot 10^{-6}$  S cm<sup>-1</sup>

$$\hat{c} = \frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_{\infty}}{\kappa_0 - \kappa_{\infty}} = \frac{3,9 - 3,0}{7,35 - 3,0} = \frac{0,9}{4,35} = 0,20$$

Die theoretischen Werte für diese Temperaturen sind  $\hat{c} = 0,13$  bzw.  $\hat{c} = 0,215$ .

Zusammenfassend kann man sagen, daß sich für die beiden gekoppelten Modellgleichungen (Material- und Energiebilanz) des elektrisch beheizten Rührkessels eine zeitoptimale Steuerfunktion und die dazugehörige Trajektorie mit Hilfe der PONTRJAGIN-Methode (vgl. Abschnitt 4.2.1) ermitteln läßt. Die eigentlichen Berechnungen sind jedoch nur mit Hilfe eines Rechenautomaten (Analogrechner) möglich und setzen bei dem hier benutzten Lösungsweg die vollständige Analyse der Hamiltonfunktion voraus. Die aufgrund der Modellgleichungen vorhergesagten zeitoptimalen

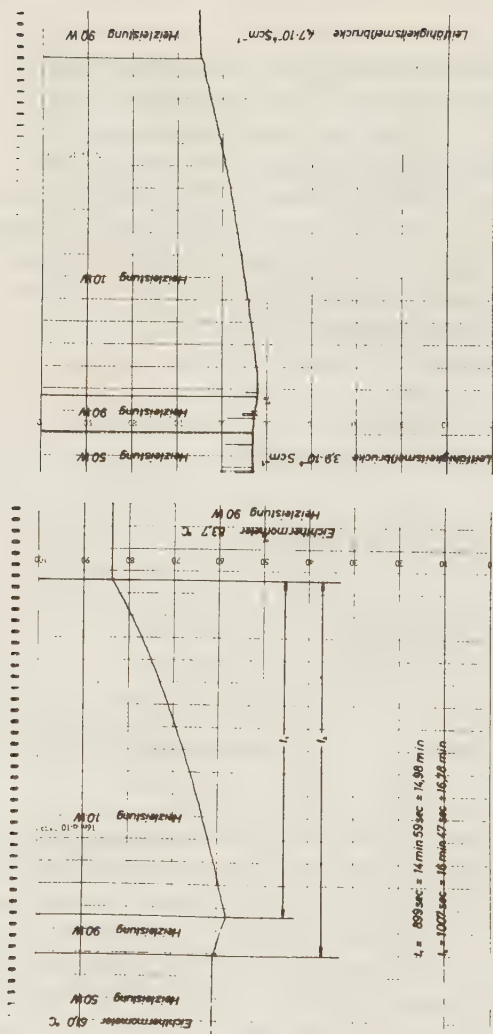


Abb. 5.1-XVI Meßschieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeitoptimalen Übergang von Punkt C nach Punkt B für  $\eta = 1000 \text{ sec}$ .

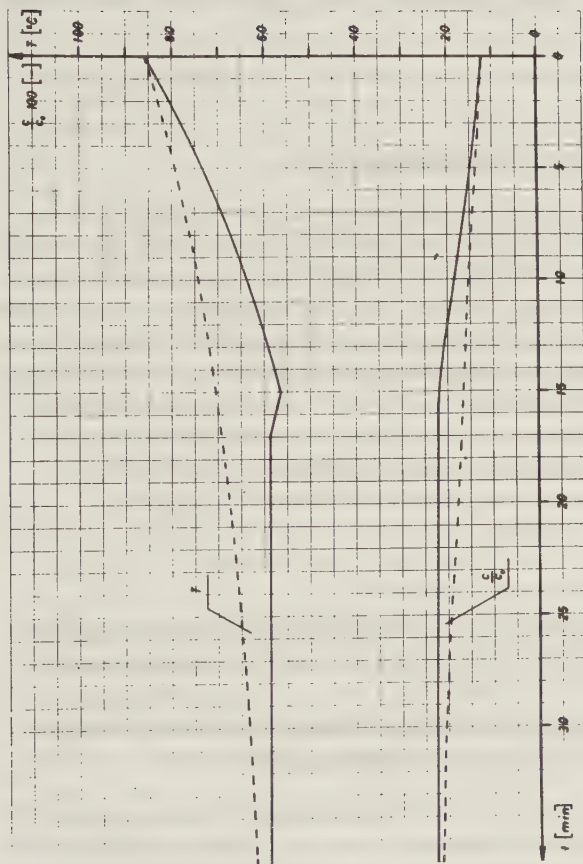


Abb. 5.1-XVII Simulierter Verlauf der Temperatur und der Konzentration für den Übergang von Punkt C nach Punkt B für  $\tau = 1000$  sec.

Steuerfunktionen führen in allen beobachteten Fällen zu einer sehr guten Übereinstimmung zwischen simulierten und experimentell bestimmten Trajektorien. Daher kann man annehmen, daß auch solche großtechnischen Reaktoren, die sich ähnlich einfach wie der elektrisch beheizte Laborrührkesselreaktor (nur zwei gekoppelte Differentialgleichungen) beschreiben und analysieren lassen, von jedem möglichen Startpunkt aus zeitoptimal angefahren werden können.

## 5.2 Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor

Für die in der Tabelle 5.2-I zusammengestellten Zustandsänderungen sollen die zeitoptimalen Steuerfunktionen und die zugehörigen Trajektorien zunächst berechnet und anschließend durch das Experiment bestätigt werden. Der Heizmediumdurchfluß  $u$  [SKT] wird dabei auf den Bereich  $40 \text{ SKT} \leq u(t) \leq 220 \text{ SKT}$  beschränkt. Die Berücksichtigung der unteren Grenze gewährleistet eine hinreichend lange Einlaufstrecke und somit eine reproduzierbare Strömungsform im Meßrohr, welche eine Voraussetzung für das Meßprinzip des Schwebekörperdurchflußmessers darstellt. Die obere Grenze ist durch die Länge des Meßrohrs gegeben.

### 5.2.1 Ermittlung der zeitoptimalen Steuerfunktionen und der zugehörigen Trajektorien für die Modellgleichungen

#### 5.2.1.1 Skalierung der Modellgleichungen und Aufstellung des adjungierten Differentialgleichungssystems

Die Materialbilanz (3.2-3) und die Energiebilanzen (3.2-5) und (3.2-7) bilden ein  $(n+2)$ -dimensionales Differentialgleichungssystem. Mit der in Abschnitt 3.2.2.1 begründeten Wahl von  $n = 10$  muß man bei der Ermittlung einer zeitoptimalen Trajektorie also von 12 gekoppelten Modellgleichungen ausgehen. Diese hohe Dimension stellt das eigentliche mathematische Problem dar.

| $\tau = 333 \text{ sec}$                      |                                       |                                       |                                       |
|-----------------------------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|
| $u = u_{\min} = 40 \text{ SKT}$<br>(Punkt A)  |                                       | $u = 115 \text{ SKT}$<br>(Punkt B)    |                                       |
| $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$                    | $\frac{c_s}{c_o} = 0,507$             | $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$            | $\frac{c_s}{c_o} = 0,370$             |
| $T_o = 34,0 \text{ }^{\circ}\text{C}$         | $T_s = 40,0 \text{ }^{\circ}\text{C}$ | $T_o = 34,0 \text{ }^{\circ}\text{C}$ | $T_s = 56,3 \text{ }^{\circ}\text{C}$ |
| $u = u_{\max} = 220 \text{ SKT}$<br>(Punkt C) |                                       | $u = 115 \text{ SKT}$<br>(Punkt B)    |                                       |
| $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$                    | $\frac{c_s}{c_o} = 0,283$             | $c_o = 0,02 \text{ mol/l}$            | $\frac{c_s}{c_o} = 0,370$             |
| $T_o = 34,0 \text{ }^{\circ}\text{C}$         | $T_s = 69,9 \text{ }^{\circ}\text{C}$ | $T_o = 34,0 \text{ }^{\circ}\text{C}$ | $T_s = 56,3 \text{ }^{\circ}\text{C}$ |

Tabelle 5.2-I Zusammenstellung der Zustandsänderungen für den warmwasserbeheizten Rührkesselreaktor

Die beiden gekoppelten Modellgleichungen des elektrisch beheizten Rührkessels (vgl. Abschnitt 5.1) konnten noch mit Hilfe eines mittelgroßen Analogrechners (Typ TR 48 der Fa. EAI) integriert werden, und die zugehörige Hamiltonfunktion war relativ leicht zu analysieren. Die 12 gekoppelten Modellgleichungen und die zugehörige Hamiltonfunktion des warmwasserbeheizten Rührkesselreaktors dagegen, insbesondere die Zahl der nichtlinearen Terme, verlangen beim Analogrechner eine Komponentenzahl, welche die Kapazität des verfügbaren Analogrechners überschreitet und zu untolerierbarer Ungenauigkeit führt und somit den Einsatz des verfügbaren Digitalrechners (Typ 3300 der Fa. CDC) begründet.

Für die Wahl einer geeigneten Schrittweite bei der numerischen Integration der Modellgleichungen ist es zweckmäßig, daß die

Zustandsvariablen von der gleichen Größenordnung sind. Daher werden alle Zustandsvariablen so skaliert, daß ihr physikalisch möglicher Bereich zwischen 0 und 1 liegt. Man setzt

$$x_i = \frac{T_{H,i}}{100} \quad (i = 1, \dots, 10) \quad x_{11} = \frac{T}{100} \quad x_{12} = \frac{c}{c_0} \quad (5.2-1)$$

Die Modellgleichungen (3.2-5), (3.2-7) und (3.2-3) nehmen dann folgende Form an:

$$\begin{aligned} \dot{x}_1 &= -(\alpha_2 + \alpha_3) x_1 + \alpha_2 x_{11} + \alpha_3 x_{11} = f_1(x_1, x_{11}, u) \\ \dot{x}_2 &= -(\alpha_2 + \alpha_3) x_2 + \alpha_2 x_{11} + \alpha_3 x_{11} = f_2(x_1, x_2, x_{11}, u) \\ \dot{x}_3 &= -(\alpha_2 + \alpha_3) x_3 + \alpha_2 x_{11} + \alpha_3 x_{11} = f_3(x_2, x_3, x_{11}, u) \\ &\vdots \\ \dot{x}_{10} &= -(\alpha_2 + \alpha_3) x_{10} + \alpha_2 x_{11} + \alpha_3 x_{11} = f_{10}(x_9, x_{10}, x_{11}, u) \\ \dot{x}_{11} &= -(\beta_2 + 10\alpha_4) x_{11} + \beta_2 \beta_1 + \sum_{i=1}^{10} \alpha_4 x_i \\ &\quad + \beta_3 \beta_5 \exp \left( \frac{-\beta_6}{\beta_7 + x_{11}} \right) x_{12}^2 = f_{11}(x_1, \dots, x_{12}, u) \\ \dot{x}_{12} &= -\beta_5 \exp \left( \frac{-\beta_6}{\beta_7 + x_{11}} \right) x_{12}^2 + \beta_4 (1 - x_{12}) = f_{12}(x_{11}, x_{12}) \end{aligned} \quad (5.2-2)$$

Die Koeffizienten  $\alpha_i$  stehen als Abkürzung für kompliziertere Ausdrücke<sup>1)</sup>:

---

1) Die Bedeutung der Symbole entnehme man dem Symbolverzeichnis.

$$\alpha_1 = \frac{T_{HZ}}{100}$$

$$\alpha_2 = \frac{q_{Hn}}{\eta_{r_i}^2 l_H} = \frac{1}{\xi} \left| \frac{T - T_o}{T_{HZ} - T_{HA}} \right| \left| \frac{s_{c_p}}{s_{Hc_{pH}}} \right| \left| \frac{V_n}{\eta_{r_i}^2 l_H} \right|$$

$$\alpha_3 = \frac{k_{iF_i n}}{\eta_{r_i}^2 l_H s_{Hc_{pH}}} \quad (5.2-3)$$

$$= \frac{1}{\xi} \left| \frac{T - T_o}{T_{HZ} - T_{HA}} \right| \left| \frac{s_{c_p}}{s_{Hc_{pH}}} \right| \left[ \left| \frac{T_{HZ} - T}{T_{HA} - T} \right|^{0,1} - 1 \right] \left| \frac{V_n}{\eta_{r_i}^2 l_H} \right|$$

$$\alpha_4 = \frac{k_{iF_i}}{V s_{c_p}} = \frac{\varphi}{\xi} \left| \frac{T - T_o}{T_{HZ} - T_{HA}} \right| \left[ \left| \frac{T_{HZ} - T}{T_{HA} - T} \right|^{0,1} - 1 \right]$$

Da  $T$ ,  $T_{HA}$  und  $T_{HZ}$  entsprechend den Gleichungen (3.2-9), (3.2-10) und (3.2-13) von  $u$  abhängen, sind die Koeffizienten  $\alpha_i$  Funktionen der Steuervariablen  $u$ .

Die Koeffizienten  $\beta_j$  stehen für folgende Konstanten:

$$\beta_1 = \frac{T_o}{100} \quad \beta_2 = \frac{\varphi}{\xi} \quad \beta_3 = \frac{(-\Delta H_R) c_o}{100 s_{c_p}} = \frac{\Delta T_{ad}}{100}$$

$$\beta_4 = \frac{1}{\xi} \quad \beta_5 = k_o c_o \quad \beta_6 = \frac{E}{100 R} \quad \beta_7 = 2,7315$$

(5.2-4)

Das zu den Gleichungen (5.2-2) adjungierte Differentialgleichungssystem (vgl. Gl. (4.1-5)) lautet:

$$\begin{aligned}
 \dot{p}_1 &= (\alpha_2 + \alpha_3) p_1 - \alpha_2 p_2 - \alpha_4 p_{11} \\
 \dot{p}_2 &= (\alpha_2 + \alpha_3) p_2 - \alpha_2 p_3 - \alpha_4 p_{11} \\
 &\vdots \\
 \dot{p}_9 &= (\alpha_2 + \alpha_3) p_9 - \alpha_2 p_{10} - \alpha_4 p_{11} \\
 \dot{p}_{10} &= (\alpha_2 + \alpha_3) p_{10} - \alpha_4 p_{11} \\
 \dot{p}_{11} &= \left[ \beta_2 + 10\alpha_4 - \beta_3\beta_5 \exp \left| \frac{-\beta_6}{\beta_7 + x_{11}} \right| x_{12}^2 \right. \\
 &\quad \cdot \left. \frac{\beta_6}{(\beta_7 + x_{11})(\beta_7 + x_{11})} \right] p_{11} - \sum_{i=1}^{10} \alpha_3 p_i \\
 &\quad + \left[ \beta_5 \exp \left| \frac{-\beta_6}{\beta_7 + x_{11}} \right| x_{12}^2 \frac{\beta_6}{(\beta_7 + x_{11})(\beta_7 + x_{11})} \right] p_{12} \\
 \dot{p}_{12} &= \left[ \beta_4 + \beta_5 \exp \left| \frac{-\beta_6}{\beta_7 + x_{11}} \right| 2x_{12} \right] p_{12} \\
 &\quad - \left[ \beta_3\beta_5 \exp \left| \frac{-\beta_6}{\beta_7 + x_{11}} \right| 2x_{12} \right] p_{11}
 \end{aligned} \tag{5.2-5}$$

Alle Zustandsvariablen sind für  $t = 0$  und  $t = \theta$  fixiert, d.h.  $\underline{x}(0) = \underline{x}_0$  und  $\underline{x}(\theta) = \underline{x}_\theta$  (vgl. Tabelle 5.2-I), dagegen kennt man keine der adjungierten Variablen zu irgendeinem Zeitpunkt. Für eine zeitoptimale Zustandsänderung muß entsprechend den Ausführungen des Abschnitts 4.1

$$\min_u [H(\underline{x}, \underline{p}, u)] = \min_u \left[ 1 + \sum_{i=1}^{12} p_i f_i \right] = 0 \tag{5.2-6}$$

gelten.

### 5.2.1.2 Fortran-IV-Rechenprogramme

Für alle im Abschnitt 4.2 beschriebenen Lösungsmethoden werden Fortran-IV-Programme erstellt, um die Effektivität dieser Methoden bei der Ermittlung der zeitoptimalen Steuerfunktionen und die zugehörigen Trajektorien für die Modellgleichungen (5.2-2) vergleichen zu können.

Die bei allen Lösungsmethoden notwendige Integration soll nach ein und demselben Verfahren erfolgen, damit der Vergleich sinnvoll ist, zumal die Integration einen wesentlichen Teil der benötigten Rechenzeit beansprucht. Es wird die Methode von Runge-Kutta-Merson [27] benutzt, da dieses Verfahren eine Einzschrittmethode darstellt, d.h. keine Anlaufrechnung benötigt und somit im Vergleich zu Mehrschrittmethoden leichter zu handhaben ist. Ein weiteres Argument für die Auswahl dieser Methode ist die variable Schrittweite, die entsprechend der geforderten Genauigkeit während der Integration selbständig an das Problem angepaßt wird und dadurch bei gesicherter Genauigkeit relativ kurze Rechenzeiten ermöglicht<sup>1)</sup>. Ferner ist die Berechnung von Funktionswerten der Lösungskurven für bestimmte Stützstellen, wie sie bei der Methode des Abstiegs im Funktionenraum (vgl. Abschnitt 4.2.2) als auch bei der Methode der Quasilinearisierung (vgl. Abschnitt 4.2.3) zur Abspeicherung der Integrationskurven nötig ist, bei dem Verfahren von Runge-Kutta-Merson direkt, d.h. ohne Interpolation, möglich. Der wesentlichste Gesichtspunkt für die Auswahl dieser Methode ist jedoch die Tatsache, daß sie von einer Reihe untersuchter Runge-Kutta-Methoden 4. Ordnung [43] bei einem Testbeispiel von drei gekoppelten, linearen Differentialgleichungen mit stark unterschiedlichen Eigenwerten (stiff system) den geringsten Fehler aufweist. Bezeichnet man die abhängige Variable mit  $x(t)$ , dann ist bei dieser Integrationsmethode [27] der  $x$ -Wert nach dem  $n$ -ten Schritt bei einer Schrittlänge von  $h$

---

1) Die von MERSON eingeführte Abschätzung der Genauigkeit ist nur für lineare Differentialgleichungen mathematisch begründet.

$$x_{n+1} = x_n + \frac{1}{2} (k_1 + 4k_4 + k_5) + O(h^5) \quad (5.2-7a)$$

wobei

$$k_1 = \frac{h}{3} f(t_n, x_n)$$

$$k_2 = \frac{h}{3} f(t_n + \frac{h}{3}, x_n + k_1)$$

$$k_3 = \frac{h}{3} f(t_n + \frac{h}{3}, x_n + \frac{k_1}{2} + \frac{k_2}{2}) \quad (5.2-7b)$$

$$k_4 = \frac{h}{3} f(t_n + \frac{h}{2}, x_n + \frac{3k_1}{8} + \frac{9k_2}{8})$$

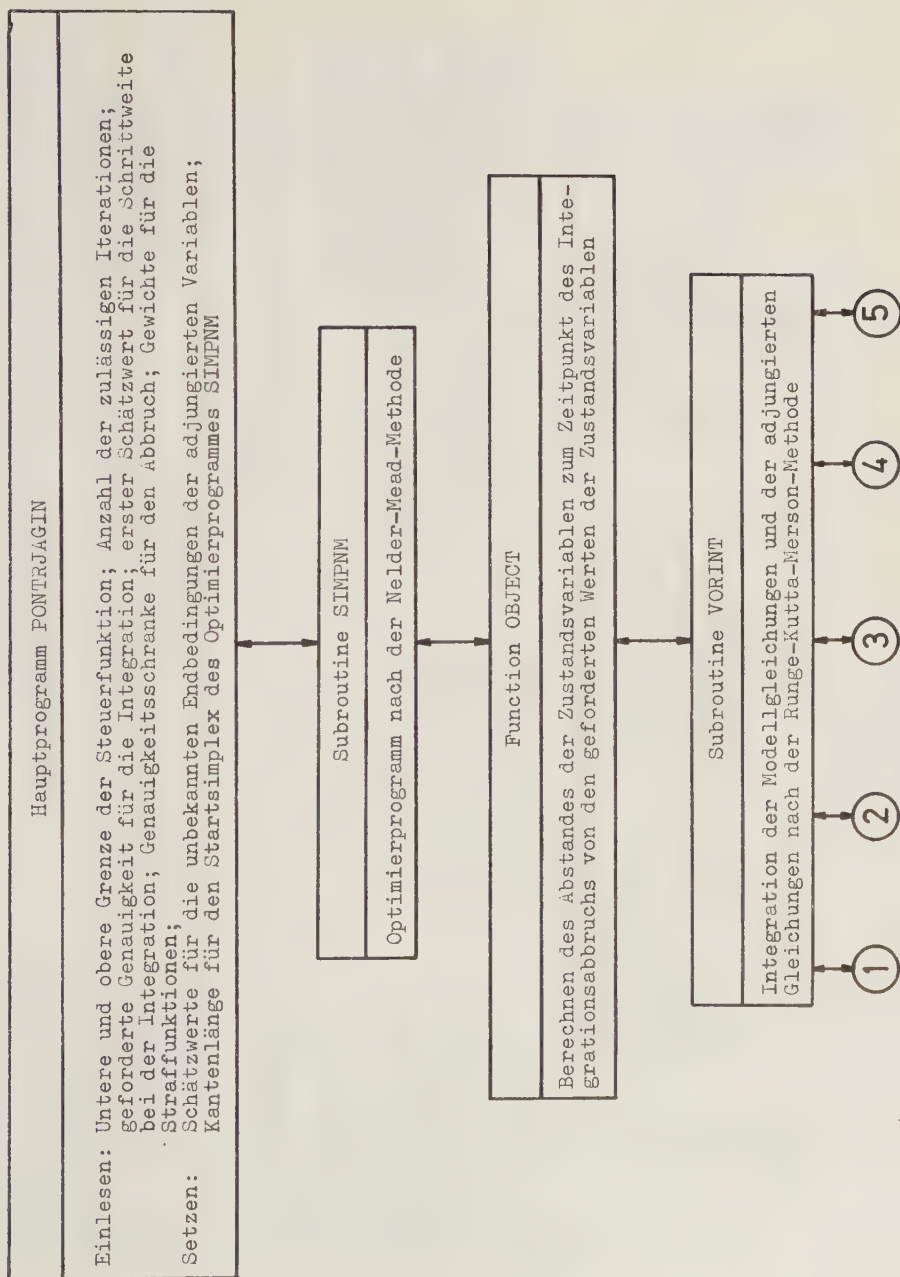
$$k_5 = \frac{h}{3} f(t_n + h, x_n + \frac{3k_1}{2} - \frac{9k_2}{2} + 6k_4)$$

Der Fehler kann dabei durch den Ausdruck

$$5e = k_1 - \frac{9k_2}{2} + 4k_4 - \frac{k_5}{2} \quad (5.2-7c)$$

abgeschätzt werden. Ist  $\varepsilon$  der maximal zulässige Fehlerwert, dann wird die Schrittlänge bei  $\varepsilon < e$  halbiert und bei  $e < \varepsilon/32$  verdoppelt.

Die Abbildungen 5.2-I, 5.2-II, 5.2-III und 5.2-VI zeigen die Programmstrukturen der erstellten Fortran-IV-Programme, die nach den im Abschnitt 4.2 beschriebenen Methoden arbeiten: Die Methode von Pontrjagin (vgl. Abschnitt 4.2.1) bildet die Grundlage für das Rechenprogramm PONTRJAGIN, auf der Methode des Abstiegs im Funktionenraum (vgl. Abschnitt 4.2.2) basiert



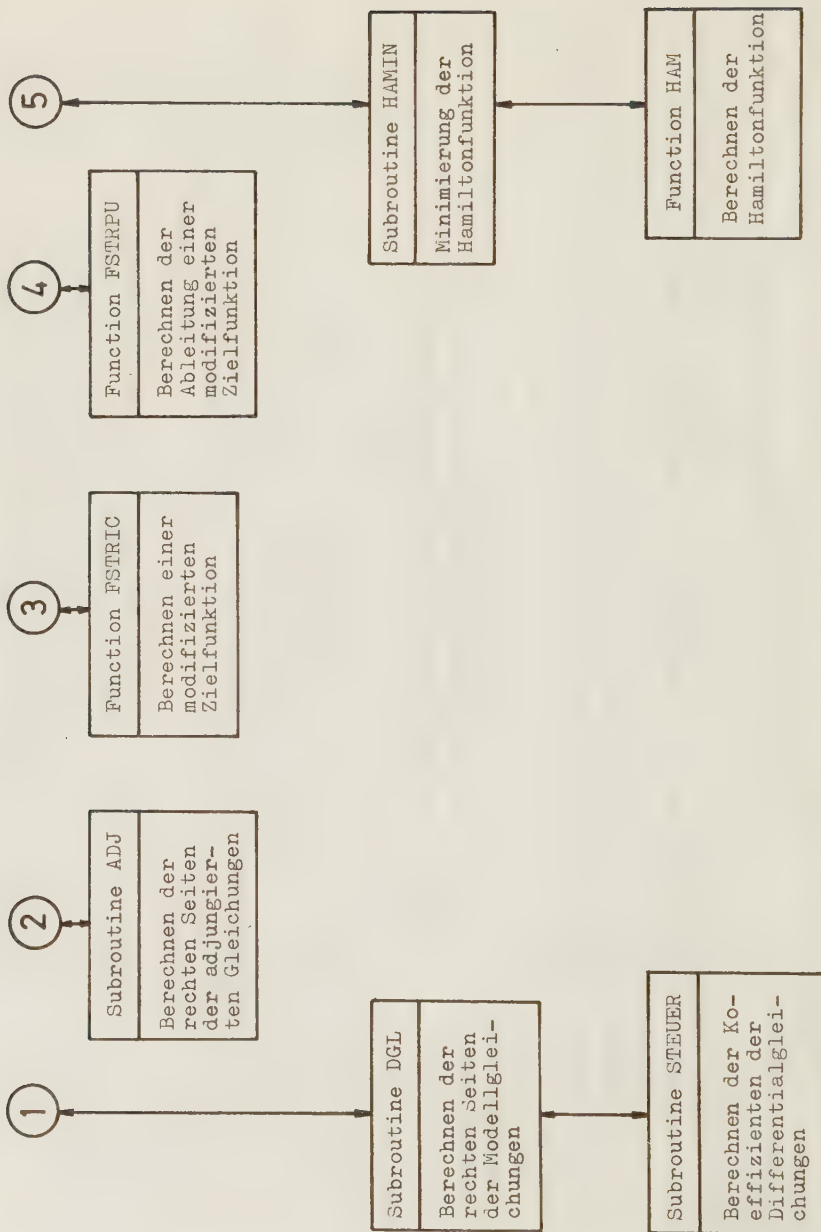
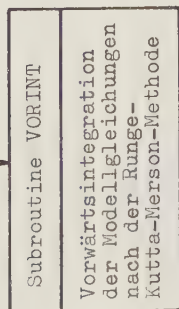


Abb. 5.2-I Programmstruktur des Rechenprogramms PONTJAGIN

# Hauptprogramm ANFURA

Einlesen: Untere und obere Grenze der Steuerfunktion; Anzahl der zulässigen Iterationen;  
geforderte Genauigkeit für die Integration; erster Schätzwert für die Schrittweite der Integration; Stützstellenabstand; Anfangswert für die Lagrangesche Interpolation zur Ermittlung eines optimalen Gewichtes für die Korrektur der Steuervariablen; Gewichte für die Straffunktionen;  
Setzen: Startfunktion für die Steuervariable; Anfangs- und Endwerte der Zustandsvariablen

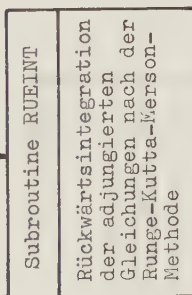
Gesamtorganisation



1

2

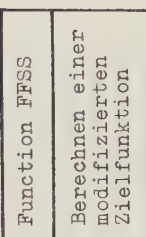
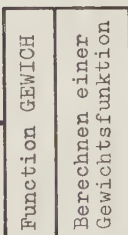
3



4

5

6



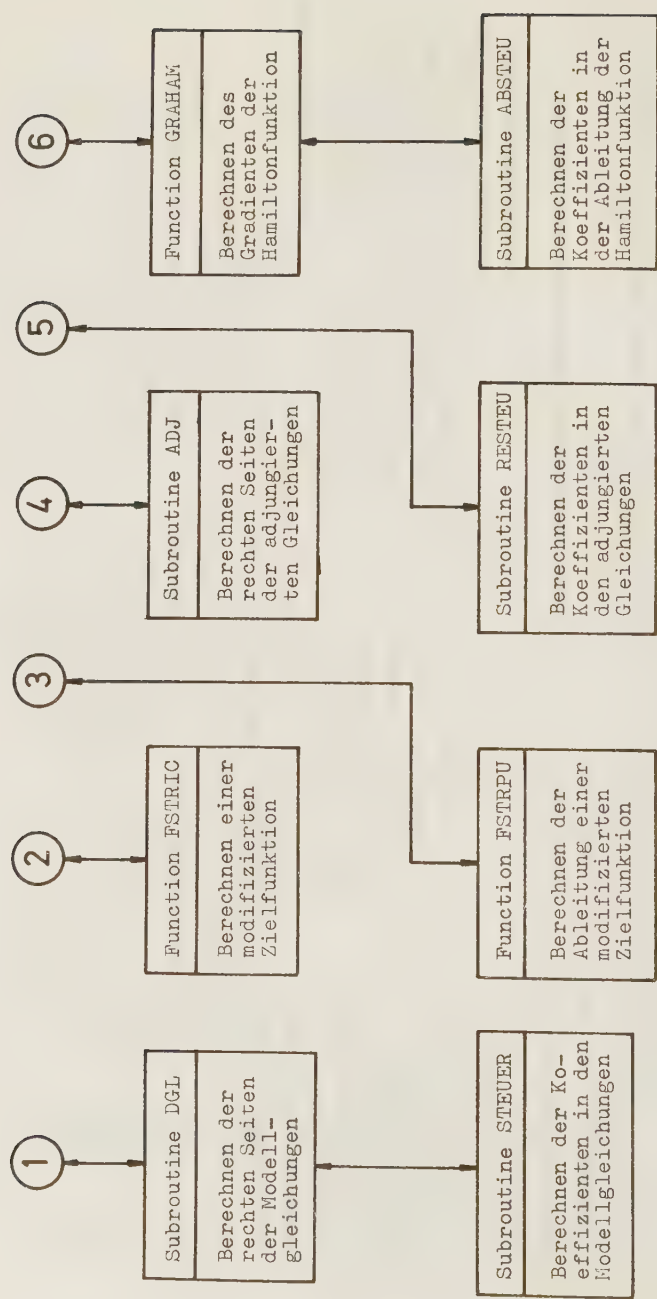
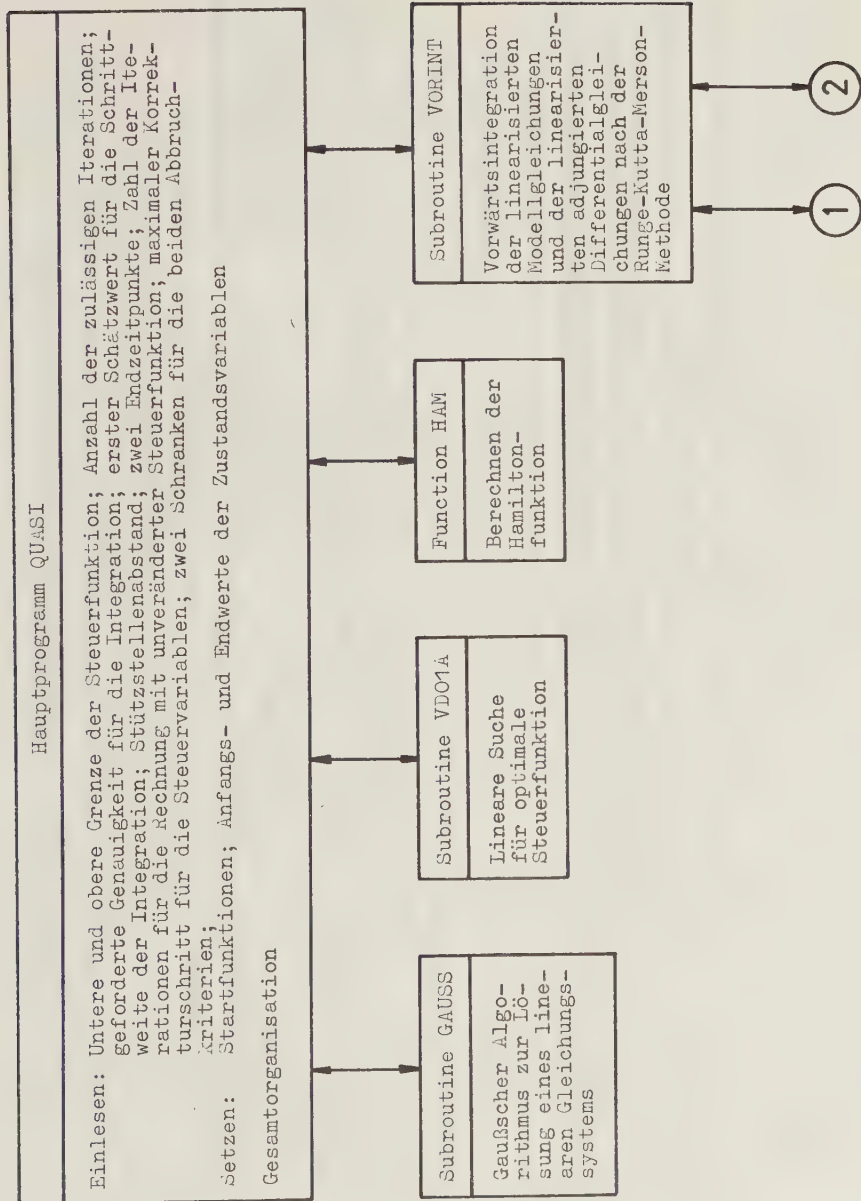


Abb. 5.2-II Programmstruktur des Rechenprogramms ANFURA



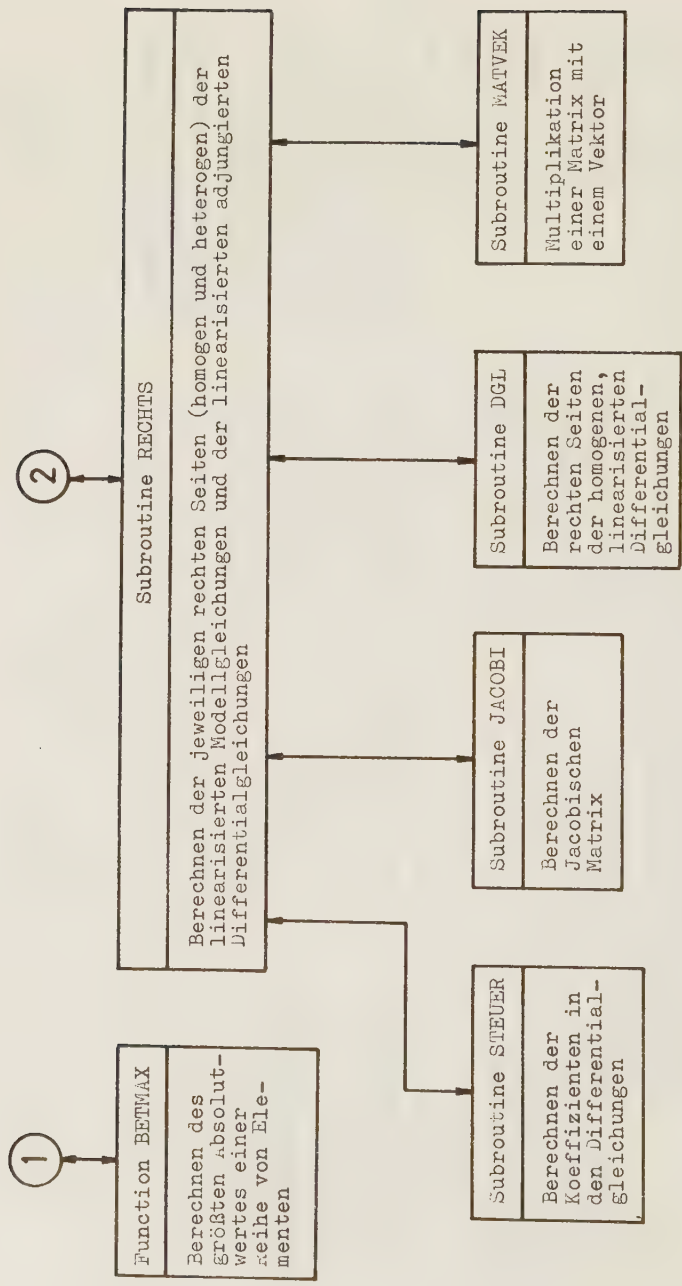
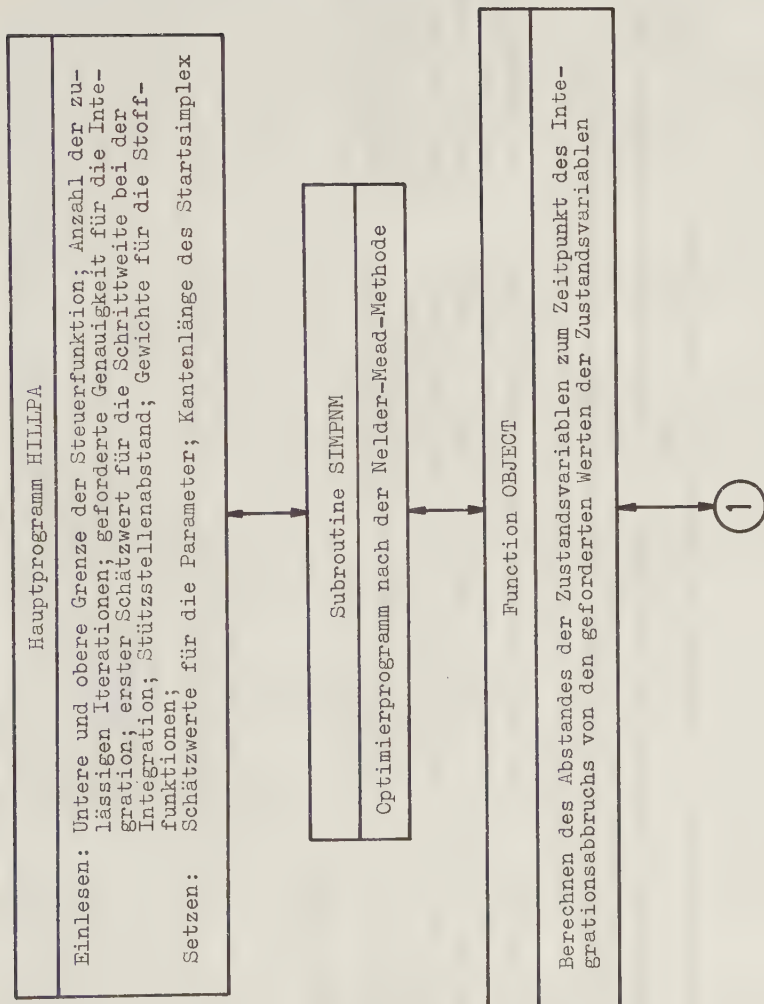


Abb. 5.2-III Programmstruktur des Rechenprogramms QUASI



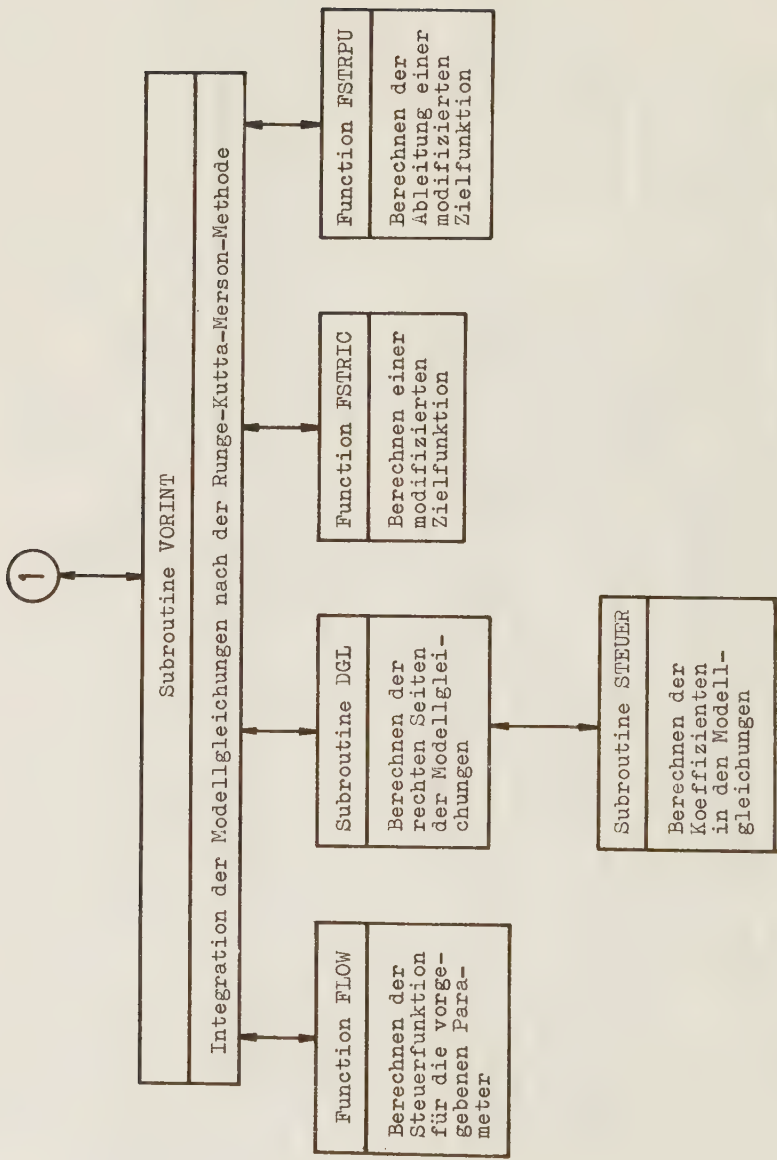


Abb. 5.2-IV Programmstruktur des Rechenprogramms HILIPA

das Rechenprogramm ANFURA, die Methode der Quasilinearisierung (vgl. Abschnitt 4.2.3) befolgt das Rechenprogramm QUASI und der Methode des Hill-Climbing an Parametern entspricht das Rechenprogramm HILLPA. Jedes dieser Programme belegt bei einfacher Rechengenauigkeit zwischen 23 und 31 K Doppelwerte des Kernspeichers. Weitere Einzelheiten über diese 4 Rechenprogramme kann man den im ITCI<sup>1)</sup> deponierten Programmausdrucken entnehmen.

#### 5.2.1.3 Effektivität der Rechenprogramme und Ermittlung der optimalen Steuerung

Mit dem Rechenprogramm PONTRJAGIN konnte keine Lösung ermittelt werden, obwohl die von ihm insgesamt verbrauchte Rechenzeit über eine Stunde betrug. Während dieser Versuche konnte weder mit einer Optimierungsmethode noch mit einem Zufallsgenerator eine Wertekombination für die 12 unbekannten adjungierten Variablen zum Endzeitpunkt gefunden werden, für welche die Rückwärtsintegration aller 24 Variablen (vgl. Gl. (5.2-2) und (5.2-5)) bei gleichzeitiger Minimierung der Hamiltonfunktion (5.2-6) nicht nach kurzer Zeit zu unrealistischen Werten für die Zustandsvariablen geführt hätte und deshalb abgebrochen wurde. Auch der Versuch, die adjungierten Variablen zum Anfangszeitpunkt zu schätzen und die Differentialgleichungen von  $t = 0$  aus vorwärts zu integrieren, scheiterte aus denselben Gründen. Während aller Integrationen war jedoch die Hamiltonfunktion entsprechend den theoretischen Überlegungen (vgl. Abschnitt 4.1) konstant, so daß das Scheitern dieser Methode nicht einem Programmfehler, sondern der hohen Dimension des Problems zugeschrieben werden muß.

Auch mit dem Rechenprogramm ANFURA konnte bei über 30 Läufen mit einer Rechenzeit von insgesamt über 5 Stunden keine zeitoptimale Trajektorie ermittelt werden. Obwohl die einzelnen

---

1) Institut für Technische Chemie I, Universität Erlangen-Nürnberg.

Rechnungen von verschiedenen Startfunktionen für die Steuervariable begonnen wurden, wobei die konstante Startfunktion  $u = 115$  SKT (normaler Einschwingvorgang) auch den theoretisch erwarteten konstanten Wert der Hamiltonfunktion ergab und somit als eine Kontrolle für die Fehlerfreiheit des Programms diente und das Rechenprogramm ANFURA hierbei in der Regel konvergierte, war die Konvergenzgeschwindigkeit so niedrig, daß selbst Stundenläufe erfolglos blieben. Der Funktionsverlauf von  $\partial H / \partial u$  (vgl. Gl. (4.2-3)) bestätigte hierbei zwar hinsichtlich seines Vorzeichens die Vermutungen, jedoch entsprach die Größenordnung der Funktionswerte nicht den Erwartungen: So ergab sich z.B. für  $\partial H / \partial u$  bei dem Übergang von 40 SKT nach 115 SKT (vgl. Tabelle 5.2-I) für die konstante Startfunktion  $u = 115$  SKT negative Funktionswerte für kleine Zeiten und positive Funktionswerte für große Zeiten, d.h. die Methode verlangte in diesem Fall zunächst eine "Beschleunigung" und anschließend eine "Verzögerung" für einen schnelleren Übergang; es ergab sich aber für  $t = 0$  eine Korrektur, die um den Faktor  $10^{-4}$  kleiner war als diejenige zum Zeitpunkt des Abbruchs der Integration. Auch der Versuch, diesen Unterschied mit Hilfe einer geeigneten Gewichtsfunktion<sup>1)</sup> auszugleichen und anstatt von Gl. (4.2-3) die Korrekturvorschrift

$$u(t) = \bar{u}(t) - \varepsilon \frac{\partial H}{\partial u} g(t) \quad (5.2-8)$$

zu benutzen, zeigte keinen Erfolg. Der Verdacht, daß die beobachtete niedrige Konvergenzgeschwindigkeit bedingt ist durch das Speichern der alten Steuerfunktion  $\bar{u}(t)$  an einer zu geringen Anzahl von Stützstellen und somit durch die zu große Ungenauigkeit der Interpolation zwischen diesen Stützstellen, wurde nicht bestätigt. Eine Verdoppelung der Stützstellenzahl zeigte ebenso wie das Rechnen mit doppelter Ge-

---

1) Als Gewichtsfunktion wurde eine Exponentialfunktion benutzt.

naugigkeit keinen Einfluß auf die Konvergenzgeschwindigkeit. Auch der Übergang zur Min-H-Methode (vgl. Abschnitt 4.2.4) im Verlauf der Rechnung zeigte keinen Erfolg. Da das Programm ANFURA einerseits durch geeignete Wahl von  $\epsilon$  (vgl. Gl. (4.2-3) bzw. Gl. (5.2-8)) Stabilität sicherstellt, d.h. die Folge der Zielfunktionswerte  $\tilde{F}$  (vgl. Gl. (4.2-4)) während der Iterationen monoton abnimmt, und andererseits eine von dem Programm HILLPA (s. unten) ermittelte optimale Lösung dahingehend korrigiert, daß zwar  $\tilde{F}$  erneut abnimmt, aber  $\Theta$  dabei wieder zunimmt, erhebt sich der Verdacht, daß bei der vorliegenden hohen Dimension hier das Konzept der Straffunktion versagt.

Das Rechenprogramm QUASI scheiterte ebenfalls bei der Berechnung einer zeitoptimalen Trajektorie. Schon bei der Lösung des 1. Teilproblems (vgl. Abschnitt 4.2.3) konnten die zur Ermittlung der allgemeinen Lösung notwendigen  $n$  linear unabhängigen homogenen Lösungen nicht bestimmt werden. Bei der Integration des linearen Differentialgleichungssystems mit variablen Koeffizienten der adjungierten Variablen ergaben sich exponentiell ansteigende bzw. abfallende Kurvenverläufe, die einerseits zu extrem langen Rechenzeiten (für eine Integration bisweilen mehr als 10 Minuten) und andererseits zu einem Überlauf des Akkumulators führten.

Das Rechenprogramm HILLPA hat als einziges der 4 Programme erfolgreich gearbeitet und optimale Parameterwerte ermittelt. Die Rechenzeiten pro Programmlauf lagen dabei je nach Wahl der Startparameter zwischen 8 und 20 Minuten. Für die Struktur der Steuerfunktion wurde dabei der lineare Ansatz

$$u(t) = a_0 + a_1 t \quad (5.2-9)$$

bzw. der quadratische Ansatz

$$u(t) = a_0 + a_1 t + a_2 t^2 \quad (5.2-10)$$

gemacht, nachdem zuvor vergeblich versucht worden war, das Systemmodell wie im Fall des elektrisch beheizten Rührkesselreaktors durch eine "Bang-Bang"-Steuerung mit zwei Schaltpunkten für  $t > 0$  (vgl. Abb. 5.1-V) zeitoptimal von Punkt A nach Punkt B (vgl. Tabelle 5.2-I) zu überführen. Durch die "Bang-Bang"-Steuerung konnte der Zustand des Systemmodells nur in die Nähe des Punktes B gebracht werden.

Für die in Tabelle 5.2-I geforderten Zustandsänderungen lieferte das Rechenprogramm HILLPA die in der Tabelle 5.2-II aufgeführten optimalen Werte für die Parameter bzw. Überführungszeiten.

Die Hinzunahme des quadratischen Gliedes in den Ansatz der Steuerfunktion (vgl. Gl. 5.2-10)) hat praktisch keinen Einfluß auf die Endzeit. Daher wird bei den folgenden experimentellen Untersuchungen nur die lineare Steuerfunktion benutzt.

### 5.2.2 Vergleich simulierter und experimenteller Ergebnisse

Es wird versucht, den warmwasserbeheizten Rührkessel mit den durch die Tabelle 5.2-II und die Gl. (5.2-9) definierten Steuerfunktionen in der kürzesten Zeit von bestimmten Anfangszuständen zu dem jeweils geforderten Endzustand (vgl. Tabelle 5.2-I) zu überführen.

Die Abb. 5.2-V zeigt den simulierten T- und  $c/c_0$ -Verlauf für die ebenfalls eingezeichnete zeitoptimale lineare Steuerfunktion für den Übergang vom Punkt A zum Punkt B (vgl. Tabelle 5.2-I). Die Kreise sind einzelne Temperaturmeßwerte des mit Hilfe der Eichkurve<sup>1)</sup> umgerechneten experimentellen T-Verlaufs, welcher zusammen mit dem experimentell ermittelten Leitfähigkeitsverlauf in Abb. 5.2-VI dargestellt ist. Man kann die Übereinstimmung der Temperatur als praktisch vollkommen bezeichnen, da die Abweichungen nur ungefähr  $0,5^\circ\text{C}$  betragen.

---

1) Deponiert im ITCI.

| Übergang von Punkt A nach Punkt B |                                                                                                      |                                                                   |  |
|-----------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------|--|
| lineare Steuerfunktion            | $a_0^* = 162,4 \text{ SKT}$<br>$a_1^* = 5,15 \text{ SKT/min}$                                        | $\theta^* = 9,6 \text{ min}$<br>$\tilde{F}^* = 13,3 \text{ min}$  |  |
| quadratische Steuerfunktion       | $a_0^* = 162,4 \text{ SKT}$<br>$a_1^* = 5,15 \text{ SKT/min}$<br>$a_2^* = 0,01 \text{ SKT/min}^2$    | $\theta^* = 10,0 \text{ min}$<br>$\tilde{F}^* = 12,0 \text{ min}$ |  |
| Übergang von Punkt C nach Punkt B |                                                                                                      |                                                                   |  |
| lineare Steuerfunktion            | $a_0^* = 56,7 \text{ SKT}$<br>$a_1^* = - 5,23 \text{ SKT/min}$                                       | $\theta^* = 11,4 \text{ min}$<br>$\tilde{F}^* = 11,9 \text{ min}$ |  |
| quadratische Steuerfunktion       | $a_0^* = 56,7 \text{ SKT}$<br>$a_1^* = - 5,23 \text{ SKT/min}$<br>$a_2^* = 0,0002 \text{ SKT/min}^2$ | $\theta^* = 11,4 \text{ min}$<br>$\tilde{F}^* = 11,9 \text{ min}$ |  |

Tabelle 5.2-II Zusammenstellung der Ergebnisse des Rechenprogramms HILIPA für die in Tabelle 5.2-I geforderten Zustandsänderungen.

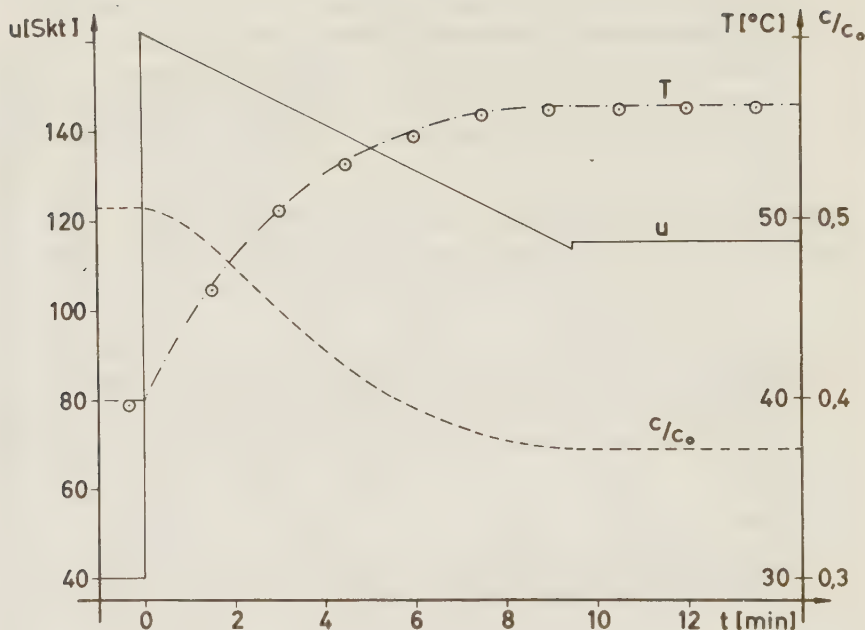


Abb. 5.2-V Simulierter Verlauf der Temperatur und der Konzentration für den zeitoptimalen Übergang von Punkt A nach Punkt B.

Die experimentellen  $c/c_0$ -Werte werden nur für den Anfangs- und Endpunkt bestimmt, da die Reaktionsenthalpie mit  $(-\Delta H_R) = 0,61 \cdot 10^{-3} \text{ cal mol}^{-1}$  äußerst gering ist, und somit der ohnehin schon wenig sensitive Konzentrationsverlauf noch unempfindlicher bezüglich Schwankungen der Reaktionsbedingungen wird. Für eine Temperatur von  $T = 39,7^\circ \text{C}$  und eine Leitfähigkeit von  $\kappa = 3,7 \cdot 10^{-3} \text{ S/cm}$  folgt mit Hilfe der Eichkurve für die Leitfähigkeiten (vgl. Abb. A.1-I)

$$\frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_\infty}{\kappa_0 - \kappa_\infty} = \frac{3,7 - 1,75}{5,57 - 1,75} = \frac{1,95}{3,82} = 0,510$$



Abb. 5.2-VI Meßschieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeit-optimalen Übergang von Punkt A nach Punkt B.

und für eine Temperatur von  $T = 56,0 \text{ }^{\circ}\text{C}$  und  $\kappa = 3,9 \cdot 10^{-3} \text{ S/cm}$

$$\frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_{\infty}}{\kappa_0 - \kappa_{\infty}} = \frac{3,9 - 2,28}{6,77 - 2,28} = \frac{1,62}{4,49} = 0,361$$

Die Übereinstimmung zwischen diesem experimentell bestimmten Anfangs- bzw. Endwert für die (dimensionslose) Konzentration mit den theoretisch erwarteten Werten (vgl. Tabelle 5.2-I)  $c/c_0 = 0,507$  bzw.  $c/c_0 = 0,370$  kann ebenfalls als praktisch vollkommen bezeichnet werden.

Zum Vergleich mit nichtoptimalen Trajektorien läßt man den warmwasserbeheizten Rührkesselreaktor von Punkt A nach Punkt B normal einschwingen. Dazu wird zum Zeitpunkt  $t = 0$  der Heizmediumdurchfluß von  $u = 40$  SKT Rotameter auf  $u = 115$  SKT umgeschaltet. Den experimentell ermittelten Verlauf der Temperatur und der Leitfähigkeit zeigen die Abbildungen 5.2-VII und 5.3-VIII. Vergleicht man diese Abbildungen mit der Abb. 5.2-VI, so stellt man fest, daß man für den zeitoptimalen Übergang nur 9,6 min benötigt, dagegen aber das normale Einschwingen ungefähr 26 min dauert, also fast dreimal solange.

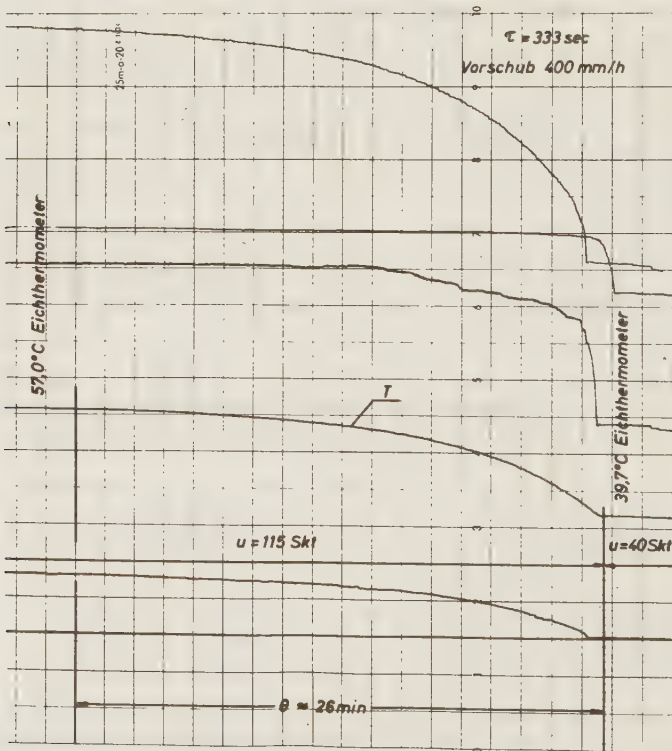


Abb. 5.2-VIII Meßschrieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur für den normalen Übergang von Punkt A nach Punkt B.

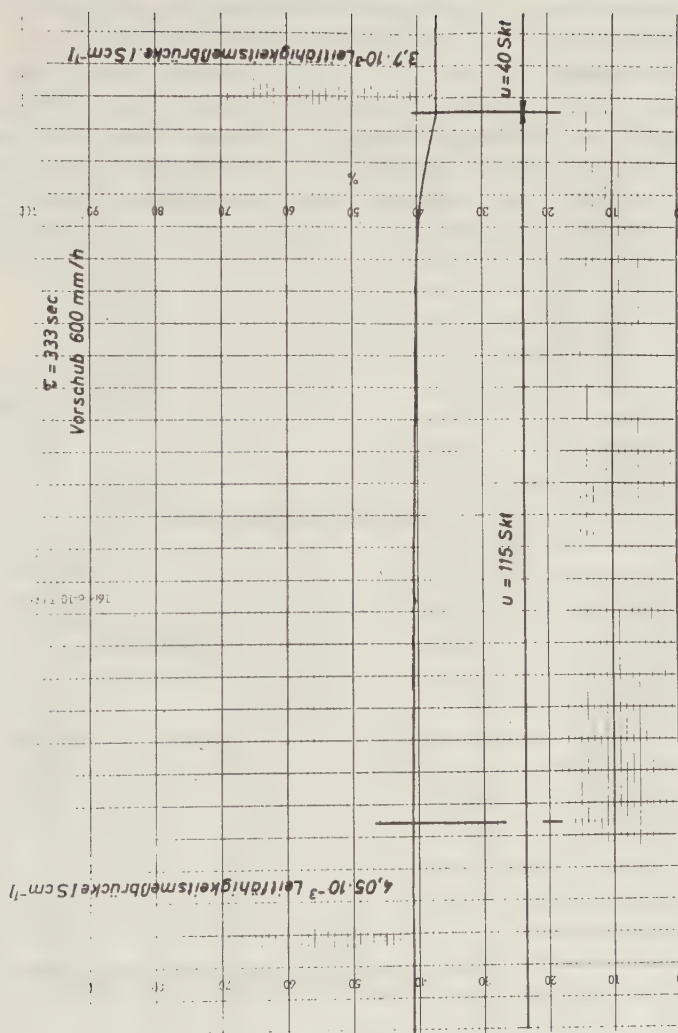


Abb. 5.2-VIII Meßschrieb des experimentellen Verlaufs der Leitfähigkeit für den normalen Übergang von Punkt A nach Punkt B.

Die Abb. 5.2-IX stellt den simulierten Verlauf der Temperatur und der Konzentration für den zeitoptimalen Übergang von Punkt C nach Punkt B dar. Die eingezeichneten Kreise sind Temperaturmeßwerte, die der Abb. 5.2-X entnommen sind. Auch hier pflanzt sich (wie beim Übergang von Punkt A nach Punkt B) die zu Beginn des Übergangs bereits vorhandene Abweichung systematisch fort. Die Abweichungen im Temperaturverlauf sind jedoch maximal 1 °C und liegen somit im Rahmen der Meßgenauigkeit, wie der Vergleich mit den stationären Messungen zur Modellerstellung (Abb. 3.2-IV) zeigt.

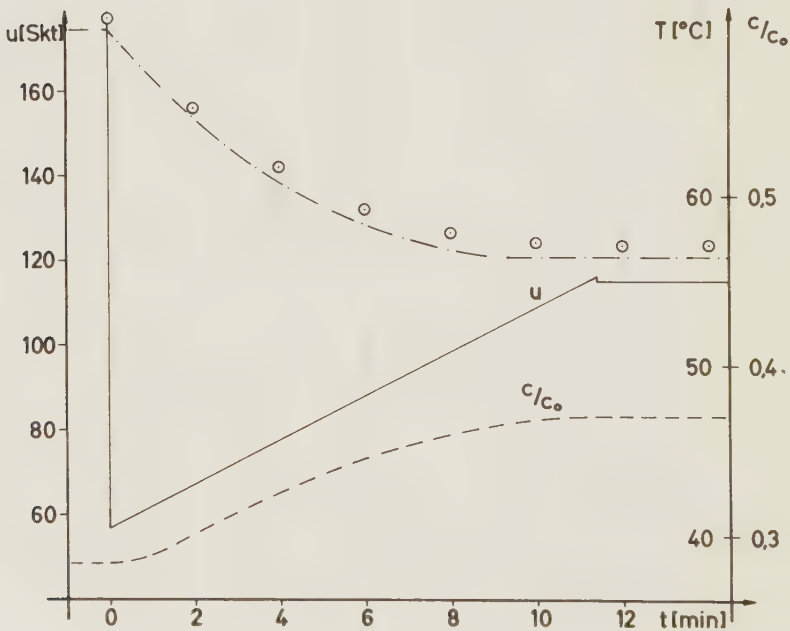


Abb. 5.2-IX Simulierter Verlauf der Temperatur und der Konzentration für den zeitoptimalen Übergang von Punkt A nach Punkt B.

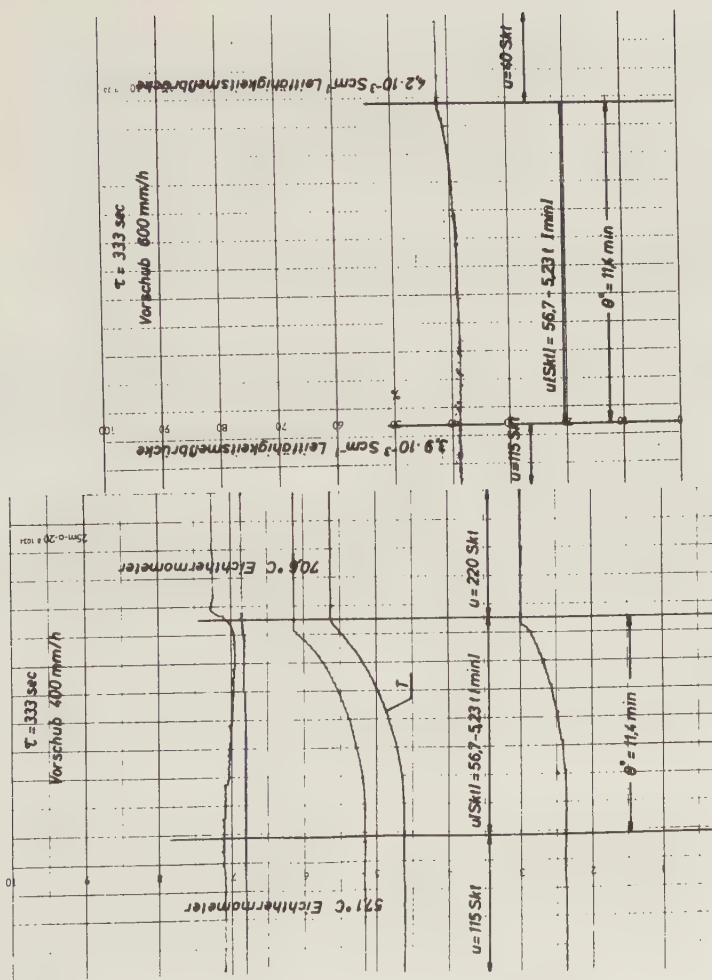


Abb. 5.2-X Meßschrieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur und der Leitfähigkeit für den zeitoptimalen Übergang von Punkt A nach Punkt B.

Die Umrechnung der gemessenen Leitfähigkeiten auf Konzentrationen ergibt für  $T = 70,6^{\circ}\text{C}$  und  $\kappa = 4,2 \cdot 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$

$$\frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_{\infty}}{\kappa_0 - \kappa_{\infty}} = \frac{4,2 - 2,74}{7,85 - 2,74} = \frac{1,46}{5,11} = 0,286$$

bzw. für  $T = 57,1^{\circ}\text{C}$  und  $\kappa = 3,9 \cdot 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$

$$\frac{c}{c_0} = \frac{\kappa - \kappa_{\infty}}{\kappa_0 - \kappa_{\infty}} = \frac{3,9 - 2,31}{6,85 - 2,31} = \frac{1,59}{4,54} = 0,350$$

Die Übereinstimmung mit den theoretischen Werten (vgl. Tabelle 5.2-I)  $c/c_0 = 0,283$  und  $c/c_0 = 0,370$  ist nicht so gut wie beim Übergang von Punkt A nach Punkt B, dürfte aber auch noch im Rahmen der Meßgenauigkeit liegen.

Die Abbildungen 5.2-XI und 5.2-XII geben den normalen Einschwingvorgang von Punkt C nach Punkt B wieder. Auch dieser normale Übergang dauert rund dreimal länger als der zeitoptimale.

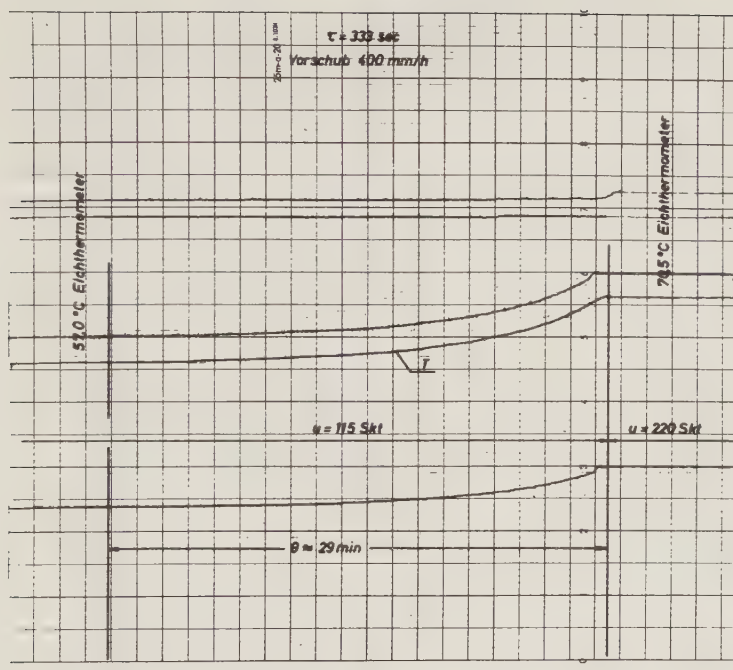


Abb. 5.2-XI Meßschrieb des experimentellen Verlaufs der Temperatur für den normalen Übergang von Punkt C nach Punkt B.

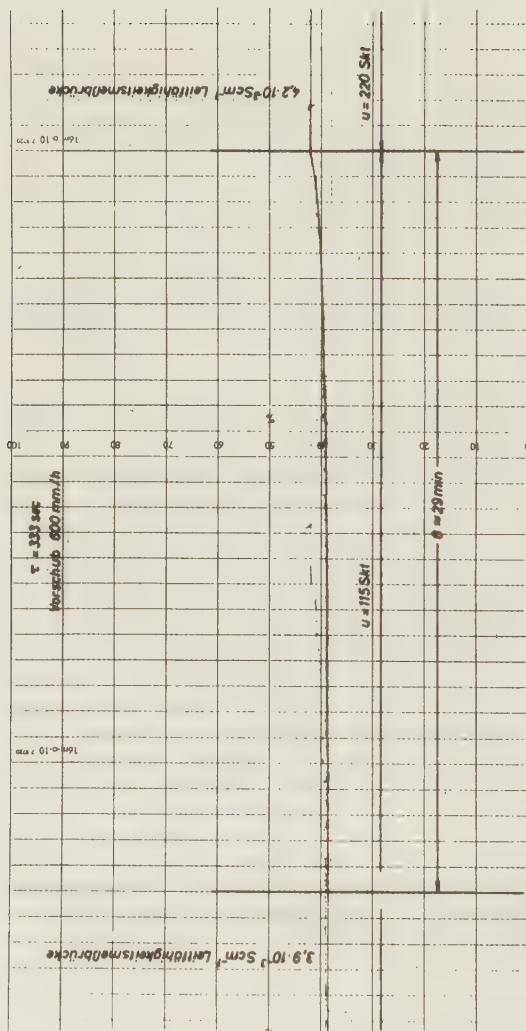


Abb. 5.2-XII Meßschrieb des experimentellen Verlaufs der Leitfähigkeit für den normalen Übergang von Punkt A nach Punkt B.

## 6. Zusammenfassung und Ausblick

Kontinuierlich betriebene Rührkesselreaktoren können nicht nur für den Fall eines stationären Betriebes optimal im Hinblick auf eine bestimmte Forderung arbeiten, sondern auch, wie diese Arbeit zeigt, von einem gegebenen Betriebszustand aus zeitoptimal in einen anderen Betriebszustand überführt werden. Die Ermittlung der dazu notwendigen zeitoptimalen Steuerung bereitet jedoch gegenüber den zuerst genannten Problemstellungen erhöhte Schwierigkeiten. Die zur Beantwortung naturwissenschaftlich-technischer Fragestellungen übliche Vorgehensweise, deren Ablauf durch die Begriffe Modellerstellung, Simulation (evtl. einschließlich Optimierung) und Verifikation gekennzeichnet ist, erweist sich dabei in allen Stadien als wesentlich schwieriger. Zusammenfassend kann man sagen:

- 1.) Das instationäre Verhalten der beiden untersuchten Rührkesselreaktoren läßt sich durch zwei gekoppelte nichtlineare Differentialgleichungen bzw. durch ein System von zwei gewöhnlichen, nichtlinearen Differentialgleichungen und einer partiellen Differentialgleichung beschreiben. Zur Bestimmung der in diesen Modellgleichungen enthaltenen Parameter benötigt man nicht nur stationäre sondern auch instationäre Messungen. Es zeigt sich hierbei, daß bei beiden benutzten Laborreaktoren die wärmespeichernden Wände und Einbauten in den Energiebilanzen mitberücksichtigt werden müssen.
- 2.) Die Modellgleichungen des elektrisch beheizten Rührkesselreaktors (konzentrierte Parameter) können noch mit Hilfe des verfügbaren Analogrechners integriert werden. Die Analyse der Hamiltonfunktion ist ohne Rechenautomat möglich und ergibt für die optimale Steuerfunktion eine "Bang-Bang"-Struktur, so daß auf dem Analogrechner nur noch die Schaltzeitpunkte bestimmt zu werden brauchen. Die Möglichkeit, den Analogrechner im Repetierbetrieb zu betreiben, gestattet es, die eigentliche Suche der opti-

malen Schaltzeitpunkte auf dem Bildschirm eines Oszillographen nach der Methode der sukzessiven Variation der Parameter durchzuführen.

Die Modellgleichungen des warmwasserbeheizten Rührkesselreaktors (verteilte Parameter) dagegen können der erforderlichen Genauigkeit und der benötigten Kapazität wegen nicht mehr mit dem im Institut für Technische Chemie I verfügbaren Analogrechner behandelt werden. Daher wird der Digitalrechner des Rechenzentrums der Universität benutzt. Die partielle Differentialgleichung (Energiebilanz des Heizmediums) wird hierbei durch 10 gewöhnliche Differentialgleichungen approximiert, d.h. es müssen insgesamt 12 Differentialgleichungen simultan gelöst werden. Eine analytische Untersuchung der Hamiltonfunktion ist nicht mehr möglich, so daß zur Ermittlung der optimalen Steuerfunktion ausschließlich numerische Verfahren herangezogen werden müssen. Wegen der variablen Endzeit und der hohen Dimension des vorliegenden Variationsproblems scheitern bei den durchgeführten Vergleichsrechnungen eine Reihe in der Literatur vorgeschlagener Lösungsverfahren (PONTRJAGIN-Methode, Abstieg im Funktionenraum, Quasilinearisierung), und nur die Methode des Hill-Climbing an Parametern gestattet es, eine optimale Steuerung zu ermitteln.

Die anhand der Modellgleichungen gewonnenen optimalen Steuerfunktionen und die zugehörigen simulierten Trajektorien werden durch das Experiment bestätigt. Bei allen Versuchen liegen die beobachteten Abweichungen im Bereich der Meßgenauigkeit.

Der beschrittene Weg, von zwei Rührkesselreaktoren unterschiedlicher Bauart und mehreren Methoden zur Ermittlung zeitoptimaler Steuerfunktionen und Trajektorien auszugehen, erscheint im Hinblick auf eine allgemeinere Aussage als notwendig. Es zeigt sich, daß die komplizierten Modellgleichungen des warmwasserbeheizten Rührkesselreaktors

nur mit der mathematisch einfachsten Optimierungsmethode erfolgreich behandelt werden können, und daß die relativ einfachen Modellgleichungen des elektrisch beheizten Rührkessels dagegen eine mathematisch anspruchsvolle Methode anzuwenden gestatten.

Obwohl in dieser Arbeit nur die Frage zeitoptimaler Trajektorien kontinuierlich betriebener Laborrührkesselreaktoren diskutiert wird, kann man mit großer Wahrscheinlichkeit annehmen, daß sowohl andere Laborapparaturen als auch großtechnische Anlagenteile sich in analoger Weise behandeln lassen. Auch andere Zielfunktionen als die Minimierung der Überführungszeit, z.B. die Minimierung des Energieverbrauchs, sind natürlich denkbar und dürften keine zusätzlichen Schwierigkeiten bereiten.

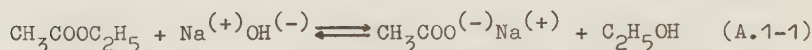
Bedingt durch die rasante Entwicklung der Digitaltechnik und durch den damit verbundenen zunehmenden Einsatz von Prozeßrechnern dürfte der Frage optimaler Trajektorien technischer Apparaturen in Zukunft eine erhöhte Bedeutung zukommen. Man kann heute schon daran denken, ganze Produktionsabläufe und auf statistischer Versuchsplanung basierende experimentelle Untersuchungen optimal im Hinblick auf eine bestimmte Forderung zu steuern bzw. zu regeln.

## A n h a n g

### A.1 Auslegen und Eichen der Versuchsapparatur

#### A.1.1 Erfassung des Reaktionsablaufes mit Hilfe einer Leitfähigkeitsmessung

Der Reaktionsablauf der alkalischen Esterverseifung



läßt sich verfolgen, indem man die gebildeten Acetationen und die noch vorhandenen Hydroxylionen über die Leitfähigkeit mißt [15]. Nach dem KOHLRAUSCHschen Gesetz ist die spezifische Leitfähigkeit einer verdünnten Lösung, in der  $\text{Na}^{(+)}$ -,  $\text{OH}^{(-)}$ - und  $\text{CH}_3\text{COO}^{(-)}$ -Ionen vorliegen<sup>1)</sup>

$$\kappa = u_{\text{Na}}c_{\text{Na}} + u_{\text{OH}}c_{\text{OH}} + u_{\text{Ac}}c_{\text{Ac}} \quad (\text{A.1-2})$$

Für verdünnte Natronlauge allein bzw. in Gegenwart von unverseiftem Ester gilt

$$\kappa_0 = u_{\text{Na}}c_0 + u_{\text{OH}}c_0 = (u_{\text{Na}} + u_{\text{OH}})c_0 \quad (\text{A.1-3})$$

wenn man die  $\text{OH}^{(-)}$ -Konzentration als Schlüsselkomponente betrachtet und berücksichtigt, daß zu Beginn der Reaktion bei äquimolarem Einsatz bzw. Zulauf die Konzentration der  $\text{OH}^{(-)}$ -Ionen gleich der Konzentration der  $\text{Na}^{(+)}$ -Ionen ist.

---

1) Die Bedeutung der Symbole entnehme man dem Symbolverzeichnis.

Für vollständigen Umsatz ist

$$\mathfrak{z}_{\infty} = u_{\text{Na}} c_0 + u_{\text{Ac}} c_0 = (u_{\text{Na}} + u_{\text{Ac}}) c_0 \quad (\text{A.1-4})$$

da für die Bildung eines  $\text{CH}_3\text{COO}^{(-)}$ -Ions ein  $\text{OH}^{(-)}$ -Ion verbraucht wird. Für ein Gemisch aus Reaktionspartnern und Reaktionsprodukten gilt

$$\mathfrak{z} = u_{\text{Na}} c_0 + u_{\text{OH}} c + u_{\text{Ac}} (c_0 - c) \quad (\text{A.1-5})$$

Aus den Gleichungen (A.1-3) bis (A.1-5) folgt

$$\frac{c}{c_0} = \frac{\mathfrak{z} - \mathfrak{z}_{\infty}}{\mathfrak{z}_0 - \mathfrak{z}_{\infty}} \quad (\text{A.1-6})$$

In der Literatur [15] werden zur Bestimmung von  $\mathfrak{z}_0$  bzw.  $\mathfrak{z}_{\infty}$  die beiden dimensionsbehafteten Gleichungen angegeben:

$$u_{\text{Na}} + u_{\text{OH}} = 0,198 + 3,7 \cdot 10^{-3} (T[^\circ\text{K}] - 291 \text{ } ^\circ\text{K}) \quad (\text{A.1-7})$$

$$u_{\text{Na}} + u_{\text{Ac}} = 0,053 + 1,6 \cdot 10^{-3} (T[^\circ\text{K}] - 291 \text{ } ^\circ\text{K}) \quad (\text{A.1-8})$$

Da das KOHLRAUSCHsche Gesetz nur für verdünnte Lösungen gilt, sollte die Anfangs- bzw. Zulaufkonzentration  $c_0$  nicht zu hoch gewählt werden, falls man den Reaktionsablauf über die Leitfähigkeit messen will. Bei einer Anfangskonzentration von  $c_0 = 0,02 \text{ mol l}^{-1}$  haben  $\mathfrak{z}_0$  bzw.  $\mathfrak{z}_{\infty}$  aufgrund der Gleichungen (A.1-7) und (A.1-8) die in der Abb. A.1-I als durchgezogene Linien dargestellten Verläufe. Eigene Leitfähigkeitsmessungen von 0,02n NaOH-Lösungen und 0,02n  $\text{CH}_3\text{COONa}$ -Lösungen weichen von diesen Verläufen etwas ab. Sie werden in der Abb. A.1-I durch die gestrichelten Geraden wiedergegeben.

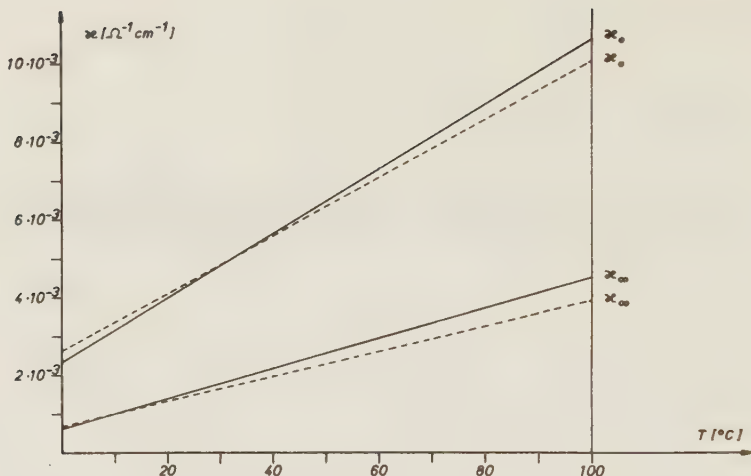


Abb. A.1-I Leitfähigkeiten von 0,02n NaOH und 0,02n  $\text{CH}_3\text{COONa}$  in Abhängigkeit von der Temperatur.

#### A.1.2 Abschätzung der Zeitkonstanten der Modellreaktion

Der Reaktionsablauf kann durch einen Kompensationsschreiber mit einer Einstellzeit von 1 sec deshalb aufgezeichnet werden, da die Zeitkonstante für die Reaktion ( $k_2^{-1}\text{c}^{-1}$ ) auch im ungünstigsten Fall ein Vielfaches der Einstellzeit des Schreibers beträgt. Legt man nämlich für eine Abschätzung die im Punkt 2) des Abschnitts 2.1 genannte Aktivierungsenergie von  $E = 11,4 \cdot 10^3 \text{ cal mol}^{-1}$  und einen Stoßfaktor von  $k_{20} = 2,5 \cdot 10^7 \text{ l mol}^{-1}\text{sec}^{-1}$ , eine obere Temperatur von  $T = 363^\circ\text{K}$  und eine maximale Konzentration von  $c = 0,02 \text{ mol l}^{-1}$  zugrunde, so findet man als untere Schranke für ( $k_2^{-1}\text{c}^{-1}$ ) etwa 15 sec.

### A.1.3 Elektrisch beheizter Rührkesselreaktor

Beim Entwurf des elektrisch beheizten Rührkessels wurde von einem serienmäßigen, gläsernen Weithalsreaktionskolben mit Planschliff (Typ FR 250 F der Fa. Quickfit, Wiesbaden) und dem zugehörigen Planschliffdeckel mit NS-Hülsen (Typ MAF 1/75) ausgegangen. In den Boden wurde ein Überlaufrohr eingeschmolzen, um einen kontinuierlichen Betrieb zu ermöglichen. Um eine nichtleitende, isolierende Wärmeübertragungsfläche zu haben, wird als Heizdraht ein 0,3 mm oxidisolierter Runddraht (Typ Vacronium COO der Fa. Vakuumschmelze, Hanau) mit einem spezifischen Widerstand von  $15,8 \Omega \text{ m}^{-1}$  verwendet. Auf den Pertinax-käfig sind 3,8 m Heizdraht gewickelt, welche einem Gesamtwiderstand von  $60 \Omega$  entsprechen. Da als Heizspannung mittels eines Regeltransformators maximal 220 V und somit eine Leistung von  $807 \text{ W} = 694 \text{ kcal h}^{-1}$  zur Verfügung stehen, kann die elektrische Heizung noch einen Durchsatz von  $q = 12 \text{ l h}^{-1}$  - dies entspricht einer Verweilzeit von  $\tau = 100 \text{ sec}$  - um  $58^\circ \text{C}$  erwärmen.

Zur Isolierung des Rührkessels wurde ein selbstaufschäumender Zweikomponenten-Hartschaum (Typ HR der Fa. K.W. Voss, Uetersen) verwendet, dessen Wärmeleitfähigkeit bei Raumtemperatur mit  $0,02 \text{ kcal m}^{-1} \text{ h}^{-1} ^\circ \text{C}^{-1}$  angegeben wird.

### A.1.4 Warmwasserbeheizter Rührkesselreaktor

Der im Abschnitt A.1.3 erwähnte Weithalsreaktionskolben aus Glas ist durch einen fast in allen Abmessungen übereinstimmenden Metallkessel aus V2A ersetzt worden. Der Kesseldeckel besteht aus Glas und besitzt 4 NS-Hülsen.

Durch die V2A-Heizschlange fließt heißes Wasser und beheizt indirekt das Reaktionsgemisch. Die Schlange hat eine Länge von  $L = 0,90 \text{ m}$ , einen Innendurchmesser von  $d_i = 6 \text{ mm}$  und eine Wandstärke von  $\delta_w = 1 \text{ mm}$ . Die Schlange soll so ausgelegt sein, daß die mit  $q = 3,6 \text{ l h}^{-1}$  und  $T_0 = 25^\circ \text{C}$  zufließenden Reaktan-

den von dem mit  $q_H = 7,2 \text{ l h}^{-1}$  und  $T_{HE} = 90^\circ \text{C}$  zufließenden Heizmedium auf  $T = 65^\circ \text{C}$  aufgeheizt werden können. Die Abb. A.1-II stellt diesen Sachverlauf schematisch dar.

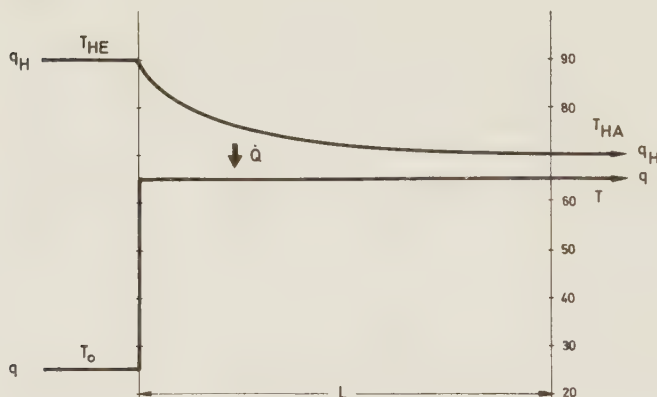


Abb. A.1-II Prinzipieller Temperaturverlauf für Heizmedium und Reaktionsgemisch.

Es müssen also  $\rho_{c_p q} (T - T_o) = \rho_{H c_{pH}} (T_{HE} - T_A) = \dot{Q} = 144 \text{ kcal h}^{-1}$  übertragen werden<sup>1)</sup>. Bei einer mittleren logarithmischen Temperatur von  $\Delta T_{lg} = 12,5^\circ \text{C}$  errechnet sich damit eine erforderliche Wärmedurchgangszahl zu  $k_a = 510 \text{ kcal m}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ }^\circ \text{C}^{-1}$ . Es muß folglich für die zu erwartende Wärmedurchgangszahl gelten [17] :

$$k_a = \frac{1}{\frac{1}{\alpha_i} \frac{F_a}{F_i} + \frac{\delta_W}{\lambda_W} \frac{F_a}{F_m} + \frac{1}{\alpha_a}} \gg 510 \text{ kcal m}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ }^\circ \text{C}^{-1} \quad (\text{A.1-9})$$

Die Wärmeübergangszahl  $\alpha_i$  auf der Innenseite der Heizschlange kann man mit Hilfe der HAUSENSchen Formel für laminare Strö-

1) Die Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme und der Dichte wurde hierbei vernachlässigt.

nung durch Rohre bestimmen [18]

$$Nu_i = 3,65 + \frac{0,0688 \left( \frac{Re \cdot Pr \cdot d_i}{L} \right)}{1 + 0,045 \left( \frac{Re \cdot Pr \cdot d_i}{L} \right)^{0,67}} \quad (A.1-10)$$

mit

$$Nu_i = \frac{\alpha_i d_i}{\lambda_H} \quad Re = \frac{W d_i}{\nu_H} \quad Pr = \frac{\rho_H c_{pH} \nu_H}{\lambda_H} \quad (A.1-11)$$

Legt man für die dimensionslosen Kenngrößen eine mittlere Temperatur von 80 °C zugrunde, dann ergibt sich  $Re_i = 1170$  und  $Pr_i = 2,33$  und somit mit Hilfe von Gleichung (A.1-10)  $Nu_i = 9,6$  bzw.  $\alpha_i = 920 \text{ kcal m}^{-2}\text{h}^{-1} \text{ °C}^{-1}$ . Das durch die Krümmung der Schlange bedingte unsymmetrische Geschwindigkeitsprofil begünstigt den Wärmeübergang im Vergleich zum geraden Rohr [19] :

$$\frac{\alpha_{\text{Schlange}}}{\alpha_{\text{Rohr}}} = 1 + 3,54 \frac{d_i}{D_S} = 1 + 3,54 \frac{6}{62} = 1,34 \quad (A.1-12)$$

Der Wärmeübergang in der Schlange ist im Vergleich zum Rohr um den Faktor 1,34 verbessert. Damit wird schließlich  $\alpha_i = 920 \cdot 1,34 = 1233 \text{ kcal m}^{-2}\text{h}^{-1} \text{ °C}^{-1}$ .

Für den Wärmeübergang von der Rohrschlange außen an das Reaktionsgemisch im Kessel gilt bei Vernachlässigung des Einflusses der Wärmeflußrichtung [20] :

$$Nu_a = 0,87 Re^{0,67} \cdot Pr^{0,33} \quad (A.1-13)$$

mit

$$\text{Nu}_a = \frac{\alpha_a D_i}{\lambda} \quad \text{Re} = \frac{n_s b^2}{\nu} \quad \text{Pr} = \frac{\rho c_p \nu}{\lambda} \quad (\text{A.1-14})$$

Zur Berechnung der dimensionslosen Kennzahlen werden die Stoffwerte von Wasser (das Reaktionsgemisch ist eine stark verdünnte Lösung) bei 65 °C eingesetzt. Mit  $D_i = 7,8 \cdot 10^{-2} \text{ m}$ ,  $b = 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ m}$  und  $n_s = 11,67 \text{ U sec}^{-1}$  ergibt sich  $\text{Re} = 16900$  und  $\text{Pr} = 2,78$ . Damit errechnet sich die Nusselt-Zahl zu  $\text{Nu}_a = 176$  und die Wärmeübergangszahl zu  $\alpha_a = 1290 \text{ kcal zu m}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ .

Jetzt sind alle Größen der rechten Seite von Gleichung (A.1-9) bekannt und man ermittelt

$$k_a = \frac{10^3}{\frac{1330}{1233} + \frac{1140}{14000} + \frac{1000}{1290}} = 515 \text{ kcal m}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$$

Es ist also zu erwarten, daß die in Abb. A.1-II dargestellten Temperaturverläufe mit der konzipierten Anlage zu realisieren sind.

#### A.1.5 Eichung der Thermoelemente

Zur Eichung der in den warmwasserbeheizten Reaktor eingebauten Thermoelemente wurde der ganze Reaktor in ein thermostatisiertes Bad abgesenkt. Für verschiedene Badtemperaturen wurden, nachdem ein Temperatúrausgleich stattgefunden hatte, die zugehörigen Anzeigen der Thermospannungen der Thermoelemente auf dem Mehrkanal-Kompensationsschreiber direkt ermittelt. Dadurch wurden systematische Fehler, die durch Abweichungen der einzelnen Thermoelemente von der Norm sowie durch ungenaue

Spannungsmessungen und Spannungsanzeigen des Schreibers verursacht werden, eliminiert. Die Eichkurven sind im ITCI<sup>1)</sup> deponiert.

#### A.1.6 Eichung der selbstgebauten Leitfähigkeitsmeßzellen

Die Zellkonstanten für die selbstgebauten Leitfähigkeitsmeßzellen, eine Tauch- und eine Durchflußzelle, wurden mit Hilfe verschieden starker NaOH-Lösungen (maximal 0,02n) und drei serienmäßigen Leitfähigkeitsmeßzellen mit bekannten Zellkonstanten (Typ PR 9510 der Fa. Philips, Hamburg) ermittelt. Durch Mittelwertbildung der Leitfähigkeitsmessungen mit den bereits geeichten Zellen erhält man einen Schätzwert für die wahre Leitfähigkeit. Die Zellkonstanten der zu eichenden Zellen wurden so gewählt, daß eine Leitfähigkeitsmessung mit ihnen diesen Schätzwert lieferte. Für die Tauchzelle wurde  $C_T = 0,669 \text{ cm}^{-1}$  gefunden, und für die Durchflußmeßzelle ergab sich  $C_D = 0,592 \text{ cm}^{-1}$ .

#### A.1.7 Eichung der Schwebekörper-Durchflußmesser

Die Schwebekörper-Durchflußmesser wurden mit Hilfe von Stoppuhr und Meßgefäß nachgeeicht. Die entsprechenden Eichkurven sind im ITCI deponiert.

---

1) ITCI steht als Abkürzung für Institut für Technische Chemie I der Universität Erlangen-Nürnberg.

## A.2 Variationsgleichungen und notwendige Bedingungen optimaler Trajektorien

Für das im Abschnitt 4.1 formulierte Variationsproblem sollen die Variationsgleichungen und die notwendigen Bedingungen für dessen Lösung hergeleitet werden.

### A.2.1 Variationsgleichungen

Variiert man den Steuervektor  $\underline{u}(t)$ , der innerhalb des Zeitraumes  $0 \leq t \leq \theta$  den Zustandsvektor  $\underline{x}$  von  $\underline{x}(0)$  nach  $\underline{x}(\theta)$  überführt, um kleine Beträge, d.h.

$$|\delta u_1(t)|, |\delta u_2(t)|, \dots, |\delta u_m(t)| \leq \varepsilon \quad (\text{A.2-1})$$

( $\varepsilon$  ist eine kleine positive Konstante), dann erhält man

$$\underline{\bar{u}}(t) = \underline{u}(t) + \delta \underline{u}(t) \quad (\text{A.2-2})$$

Mit der Variation  $\delta u(t)$  sind Änderungen sowohl für den Zustandsvektor und dessen Ableitung nach der Zeit als auch für die Endzeit und somit auch für die Zielfunktion verbunden:

$$\underline{\bar{x}}(t) = \underline{x}(t) + \delta \underline{x}(t) \quad (\text{A.2-3})$$

$$\dot{\underline{\bar{x}}}(t) = \dot{\underline{x}}(t) + \delta \dot{\underline{x}}(t) \quad (\text{A.2-4})$$

$$\bar{\theta} = \theta + \delta \theta \quad (\text{A.2-5})$$

$$\bar{F} = F + \delta F \quad (\text{A.2-6})$$

Mit den Matrizen der ersten Ableitungen

$$\underline{A}(t) = \left[ \frac{\partial f_i}{\partial x_j} \right]_{\substack{\underline{x}(t) \\ \underline{u}(t)}} \quad (\text{A.2-7})$$

und

$$\underline{B}(t) = \left[ \frac{\partial f_i}{\partial u_j} \right]_{\substack{\underline{x}(t) \\ \underline{u}(t)}} \quad (\text{A.2-8})$$

folgt aus Gl. (4.1-1) für die Variation der Ableitung des Zustandsvektors nach der Zeit:

$$\delta \dot{\underline{x}}(t) = \underline{A}(t) \delta \underline{x}(t) + \underline{B}(t) \delta \underline{u}(t) + \underline{0}(\epsilon) \quad (\text{A.2-9})$$

Für die Variation der Zielfunktion ergibt sich aus den Gleichungen (4.1-2) und (4.1-3):

$$\delta F = \left[ \frac{\partial F}{\partial \underline{x}} \right]^T \delta \underline{x}(\theta) + \left[ \left[ \frac{\partial F}{\partial \underline{x}} \right]^T \underline{f}(\underline{x}(\theta), \underline{u}(\theta)) + \frac{\partial F}{\partial \theta} \right] \delta \theta \quad (\text{A.2-10})$$

Um für  $\delta F$  einen Ausdruck zu erhalten, der nicht von der Variation des Zustandsvektors, sondern nur noch von der Variation des Steuervektors und der Variation der Endzeit abhängt, multipliziert man Gl. (A.2-9) von links mit der Transponierten des sogenannten adjungierten Vektors  $\underline{p}(t)$ . Der adjungierte Vektor soll die gleiche Dimension wie der Zustandsvektor  $\underline{x}(t)$  haben, d.h. er ist n-dimensional. Über ihn wird man später so verfügen, daß sich bestimmte Beziehungen stark vereinfachen. Zunächst bleibt nur darauf zu achten, daß die Aussagen der Gleichungen durch seine Einführung nicht verfälscht werden.

$$-\underline{p}^T(t) \delta \dot{\underline{x}}(t) + \underline{p}^T(t) \underline{A}(t) \delta \underline{x}(t) + \underline{p}^T(t) \underline{B}(t) \delta \underline{u}(t) + \underline{p}^T(t) \underline{Q}(\varepsilon) \equiv 0 \quad (\text{A.2-11})$$

Integriert man partiell von 0 bis  $\theta$  über die Identität (A.2-11), dann ergibt sich:

$$-\underline{p}^T(\theta) \delta \underline{x}(\theta) + \underline{p}^T(0) \delta \underline{x}(0) + \int_0^\theta (\dot{\underline{p}}^T(t) \delta \underline{x}(t) + \underline{p}^T(t) \underline{A}(t) \delta \underline{x}(t) + \underline{p}^T(t) \underline{B}(t) \delta \underline{u}(t) + \underline{p}^T(t) \underline{Q}(\varepsilon)) dt \equiv 0 \quad (\text{A.2-12})$$

Um die obengenannte Beziehung für  $\delta F$  zu erhalten, addiert man Gl. (A.2-12) zu Gl. (A.2-10) und verlangt von dem Vektor  $\underline{p}(t)$  folgende Eigenschaft:

$$\dot{\underline{p}}(t) = -\underline{A}^T \underline{p}(t) \quad (\text{A.2-13})$$

Damit wird aus Gl. (A.2-10):

$$\begin{aligned} \delta F = & \left[ \frac{\partial F}{\partial \underline{x}} \right]^T \delta \underline{x}(\theta) - \underline{p}^T(\theta) \delta \underline{x}(\theta) + \underline{p}^T(0) \delta \underline{x}(0) + \\ & + \int_0^\theta \underline{p}^T(t) \underline{B}(t) \delta \underline{u}(t) dt + \left[ \left[ \frac{\partial F}{\partial \underline{x}} \right]^T \underline{f}(\underline{x}(\theta), \underline{u}(\theta)) + \frac{\partial F}{\partial \theta} \right] \delta \theta + o(\varepsilon) \end{aligned} \quad (\text{A.2-14})$$

Für die weitere Diskussion der Gl. (A.2-14) werden zwei Grenzfälle behandelt:

1.) Alle  $\underline{x}_i(\theta)$  sind frei

Durch das homogene, lineare Differentialgleichungssystem mit veränderlichen Koeffizienten (A.2-13) ist der adjungierte Vektor  $\underline{p}(t)$  noch nicht vollständig bestimmt. Verlangt man daher von  $\underline{p}(t)$  noch die zusätzliche Eigenschaft

$$\underline{p}(\theta) = \frac{\partial F}{\partial \underline{x}} \quad (\text{A.2-15})$$

und berücksichtigt, daß entsprechend Gl. (4.1-2)  $\delta \underline{x}(0) = \underline{0}$  ist, dann vereinfacht sich Gl. (A.2-14) bei freier Endzeit zu

$$\begin{aligned} \delta F = \int_0^\theta \underline{p}^T(t) \underline{B}(t) \delta \underline{u}(t) dt + \left[ \left[ \frac{\partial F}{\partial \underline{x}} \right]^T \underline{f}(\underline{x}(\theta), \underline{u}(\theta) + \right. \\ \left. + \frac{\partial F}{\partial \theta} \right] \delta \theta + o(\epsilon) \end{aligned} \quad (\text{A.2-16})$$

bzw. bei fixierter Endzeit wegen  $\delta \theta = 0$  zu

$$\delta F = \int_0^\theta \underline{p}^T(t) \underline{B}(t) \delta \underline{u}(t) dt + o(\epsilon) \quad (\text{A.2-17})$$

2.) Alle  $\underline{x}_i(\theta)$  sind fixiert (zeitoptimales Verhalten)

Eine Minimierung der Zielfunktion (4.1-3) ist nur durch Variieren von  $\theta$  möglich. Bei freier Endzeit  $\theta$  besteht zwischen den Variationen  $\delta \theta$  und  $\delta \underline{x}(\theta)$  folgender Zusammenhang:

$$\underline{\bar{x}}(\bar{\theta}) = \underline{\bar{x}}(\theta + \delta \theta) = \underline{x}(\theta) + \delta \underline{x}(\theta) + \underline{f}(\underline{x}(\theta), \underline{u}(\theta)) \delta \theta + o(\epsilon) \quad (\text{A.2-18})$$

Da alle  $x_i(\theta)$  fixiert sind, muß gelten

$$\bar{x}(\bar{\theta}) = \bar{x}(\theta + \delta\theta) = \underline{x}(\theta) \quad (\text{A.2-19})$$

Damit wird Gl. (A.2-18) zu

$$\delta \underline{x}(\theta) = - \underline{f}(\underline{x}(\theta), \underline{u}(\theta)) \delta\theta - \underline{Q}(\varepsilon) \quad (\text{A.2-20})$$

Setzt man diesen Ausdruck für  $\delta \underline{x}(\theta)$  in Gl. (A.2-14) ein und berücksichtigt wieder, daß  $\delta \underline{x}(0) = \underline{Q}$  ist, dann findet man auch für diesen Fall als Ergebnis Gl. (A.2-16).

In beiden Fällen sind für die  $2n$  Differentialgleichungen auch  $2n$  Anfangsbedingungen gegeben, jedoch ist vom rechen-technischen Standpunkt aus betrachtet der Fall 1.) der einfachere der beiden: für das Differentialgleichungssystem (4.1-1) sind die Anfangswerte  $\underline{x}(0) = \underline{x}_0$  gegeben, und für das Differentialgleichungssystem (A.2-13) liegen mit Gl. (A.2-15) alle Endwerte  $\underline{p}(\theta)$  fest. Daher kann man für ein vorgegebenes  $\underline{u}(t)$  z.B. zunächst die Zustandsvariablen von  $t = 0$  bis  $t = \theta$  und anschließend die adjungierten Variablen von  $t = \theta$  bis  $t = 0$  integrieren. Ein derartiges Vorgehen ist im Fall 2.) unmöglich. Hier ist  $\underline{x}(t)$  sowohl für  $t = 0$  als auch für  $t = \theta$  vollständig fixiert, dagegen kennt man zu keinem Zeitpunkt  $\underline{p}(t)$ .

### A.2.2 Notwendige Bedingungen für ein Minimum

Bei der Herleitung notwendiger Bedingungen für ein Minimum der Zielfunktion (4.1-3) wird jeweils zuerst der Fall 2.) des Abschnitts A.2.1 diskutiert. Es wird stets vorausgesetzt, daß der Zustandsvektor  $\underline{x}(t)$  unbeschränkt ist. Der Steuervektor  $\underline{u}(t)$  dagegen ist zunächst ebenfalls unbeschränkt, wird später aber als beschränkt angenommen.

#### A.2.2.1 Unbeschränkter Steuervektor

Setzt man voraus, die optimale Lösung  $\underline{u}^*(t)$  existiert und den Zustandsvektor in der kürzesten Zeit  $\theta^*$  von der vorgegebenen Anfangslage  $\underline{x}(0) = \underline{x}_0$  in die vorgegebene Endlage  $\underline{x}(\theta) = \underline{x}_\theta$  überführt, dann kann für alle Variationen  $\delta \underline{u}^*(t)$ , die  $\delta \underline{x}(0) = \delta \underline{x}(\theta) = \underline{0}$  gewährleisten, die Zielfunktion  $F$  nicht abnehmen, d.h.  $\delta F^* \geq 0$ .

Wählt man als Variation für den Steuervektor

$$\delta \underline{u}^*(t) = -\epsilon' \underline{p}^T(t) \underline{p}(t) \quad (\text{A.2-21})$$

( $\epsilon'$  ist eine kleine positive Konstante) und fordert zusätzlich

$$\underline{p}^T(\theta^*) \underline{f}(\underline{x}^*(\theta^*), \underline{u}^*(\theta^*)) + \frac{\partial F^*}{\partial \theta} \stackrel{!}{=} 0 \quad (\text{A.2-22})$$

(Gl. (A.2-22) wird als Abbruchbedingung bezeichnet), dann wird entsprechend Gl. (A.2-16):

$$\delta F^* = -\epsilon' \int_0^{\theta^*} [\underline{p}^T(t) \underline{p}(t)]^T [\underline{p}^T(t) \underline{p}(t)] dt + O(\epsilon) \quad (\text{A.2-23})$$

$\varepsilon'$  und  $\varepsilon$  sind von der gleichen Größenordnung, d.h. es gilt

$$\lim_{\varepsilon' \rightarrow 0} \frac{O(\varepsilon)}{\varepsilon'} = 0 \quad (\text{A.2-24})$$

Teilt man Gl. (A.2-23) durch  $\varepsilon'$  und vollzieht den Grenzübergang  $\varepsilon' \rightarrow 0$ , dann ergibt sich

$$\delta F^* = \int_0^{\theta^*} [\underline{B}^T(t) \underline{p}(t)]^T [\underline{B}^T(t) \underline{p}(t)] dt \leq 0 \quad (\text{A.2-25})$$

Gl. (A.2-25) ist ein Integral über einen positiven Bereich einer Quadratsumme. Die Ungleichung ist folglich nur dann befriedigt, wenn der Integrand identisch Null wird. Falls  $\underline{u}^*(t)$  die Zielfunktion (4.1-3) minimiert, muß außer Gl. (A.2-22) auch die Beziehung

$$\underline{B}^T(t) \underline{p}(t) = 0 \quad (\text{A.2-26})$$

gelten. Der optimale Steuervektor  $\underline{u}^*(t)$  und die zugehörige optimale Trajektorie  $\underline{x}^*(t)$  gehorchen also einem Satz algebraischer Gleichungen, die zu jedem Zeitpunkt  $0 \leq t \leq \theta^*$  erfüllt sein müssen.

Die Differentialgleichungen der Zustandsvariablen (4.1-1) mit ihren gegebenen Anfangszuständen und Endzuständen sowie die Differentialgleichungen der adjungierten Variablen (A.2-13) und das Gleichungssystem (A.2-26) bilden zusammen mit der Abbruchbedingung (A.2-22) die notwendigen Bedingungen für einen stationären Wert von  $F(\underline{x}(\theta), \theta)$ . Man bezeichnet diese notwendigen Bedingungen als Euler-Lagrangesche Gleichungen.

Dieselben Beziehungen ergeben sich für den Fall 1.) des Abschnitts A.2.1 mit der einzigen Ausnahme, daß dann an die

Stelle der Endbedingung  $\underline{x}(\theta) = \underline{x}_\theta$  die Beziehung (A.2-15) tritt und die Abbruchbedingung (A.2-22) entfällt. Die Darstellung wird eleganter und bietet bisweilen Vorteile, wenn man die sogenannte Hamiltonfunktion  $H$  einführt. Diese ist definiert als

$$H(\underline{x}(t), \underline{p}(t), \underline{u}(t)) = \frac{\partial F}{\partial \theta} + \underline{p}^T \underline{f} \quad (\text{A.2-27})$$

Mit ihr kann man die Differentialgleichungssysteme (4.1-1) und (A.2-13) in sogenannter kanonischer Form schreiben:

$$\dot{\underline{x}} = + \frac{\partial H}{\partial \underline{p}} \quad (\text{A.2-28})$$

$$\dot{\underline{p}} = - \frac{\partial H}{\partial \underline{x}} \quad (\text{A.2-29})$$

Die Identität (A.2-26) lautet dann

$$\frac{\partial H}{\partial \underline{u}} \equiv 0 \quad (\text{A.2-30})$$

Aus den Gleichungen (A.2-28) bis (A.2-30) folgt:

$$\dot{H}(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}^*(t)) = \left[ \frac{\partial H}{\partial \underline{x}} \right]^T \dot{\underline{x}} + \left[ \frac{\partial H}{\partial \underline{p}} \right]^T \dot{\underline{p}} + \left[ \frac{\partial H}{\partial \underline{u}} \right]^T \dot{\underline{u}} \equiv 0 \quad (\text{A.2-31})$$

d.h. die Hamiltonfunktion ist konstant entlang einer optimalen Trajektorie. Für eine zeitoptimale Trajektorie ergibt sich wegen der mit Hilfe von  $H$  formulierten Abbruchbedingung (A.2-22)

$$H(\underline{x}^*(\theta^*), \underline{p}^*(\theta^*), \underline{u}^*(\theta^*)) = 0 \quad (\text{A.2-32})$$

aus Gl. (A.2-31)

$$H(\underline{x}^*(t), \underline{p}^*(t), \underline{u}^*(t)) \equiv 0 \quad (\text{A.2-33})$$

d.h. die Hamiltonfunktion hat den Wert Null.

Es ist zu beachten, daß die Hamiltonfunktion nicht nur für optimale Trajektorien, sondern auch für eine konstante Steuerfunktion, d.h. für

$$\dot{\underline{u}}(t) = 0 \quad (\text{A.2-34})$$

entlang der zugehörigen Trajektorie einen konstanten Wert besitzt (vgl. Gl. (A.2-31)).

### A.2.2.2 Beschränkter Steuervektor

In diesem Abschnitt wird davon ausgegangen, daß der Steuervektor durch eine untere und eine obere Grenze beschränkt ist:

$$\underline{u}_{\min} \leq \underline{u}^*(t) \leq \underline{u}_{\max} \quad (\text{A.2-35})$$

Es wird vorausgesetzt, daß der zeitoptimale Steuervektor  $\underline{u}^*(t)$ , der die Grenzen (A.2-35) berücksichtigt, existiert und stückweise stetig ist und nur endlich viele Sprungstellen aufweist. Für alle zulässigen Variationen  $\delta \underline{u}^*(t)$  muß auch

hier  $\delta F^* \geq 0$  sein. Solange  $\underline{u}^*(t)$  zwischen  $\underline{u}_{\min}$  und  $\underline{u}_{\max}$  liegt und die Hamiltonfunktion hinsichtlich  $\underline{u}$  differenzierbar ist, gilt die notwendige Bedingung (A.2-30). Um die Verhältnisse auch für Grenzlagen zu klären, wird zunächst die Situation  $u_1^* = u_{1,\max}$  diskutiert, d.h. die erste Komponente des Steuervektors befindet sich in der oberen Grenzlage. Der Einfachheit halber setzt man  $\delta u_2^*(t) = \delta u_3^*(t) = \dots = \delta u_m^*(t) = 0$  für  $0 \leq t \leq \theta^*$  und  $\delta u_1^* = 0$  für  $u_1^* \neq u_{1,\max}$ . Damit die Grenze  $u_{1,\max}$  nicht verletzt wird, muß eine zulässige Variation  $\delta u_1^*$  für die Zeitintervalle, für die  $u_1^* = u_{1,\max}$  gilt, negativ sein. Man kann daher folgende Variation vornehmen:

$$\delta u_1^* = \varepsilon_1 \frac{\partial H}{\partial u_1} \leq 0 \quad (\text{A.2-36})$$

$\varepsilon_1$  ist eine Konstante mit zunächst unbekannten Vorzeichen, da man das Vorzeichen von  $\partial H / \partial u_1$  nicht kennt. Gl. (A.2-25) vereinfacht sich jedoch für die gewählten Variationen zu

$$\delta F^* = \varepsilon_1 \int_0^{\theta} \left( \frac{\partial H}{\partial u_1} \right)^2 dt + o(\varepsilon) \geq 0 \quad (\text{A.2-37})$$

d.h.  $\varepsilon_1$  muß positiv sein. Aus Gl. (A.2-36) ergibt sich damit

$$\frac{\partial H}{\partial u_1} \leq 0 \quad (\text{A.2-38})$$

$u_1$  nimmt ab, wenn man sich in das Innere des zulässigen Gebietes (A.2-35) bewegt. Daher muß  $H$  zunehmen, d.h. die Hamiltonfunktion hat ein relatives Minimum hinsichtlich  $u_1$ , wenn  $u_1^* = u_{1,\max}$  ist. (In Ausnahmefällen kann sie stationär sein.)

Die entsprechende Analyse läßt sich auch für den Fall  $u_1^* = u_{1,\min}$  ( $\delta u_1^* \geq 0$ ) durchführen; sie liefert das gleiche

Ergebnis, d.h. die Hamiltonfunktion hat ein relatives Minimum hinsichtlich  $u_1$ , wenn  $u_1^* = u_{1,\min}$  ist. Die Symmetrie des Problems bedingt die gleichen Aussagen für  $u_2, u_3, \dots, u_m$ .

Entlang der optimalen Trajektorie ist die Hamiltonfunktion also auch für den Fall eines beschränkten Steuervektors konstant. Immer wenn innerhalb eines endlichen Zeitintervalls der Term  $\partial H / \partial \underline{u}$  für  $\underline{x}^*(t)$ ,  $\underline{p}^*(t)$  und  $\underline{u}^*(t)$ , d.h. entlang der optimalen Trajektorie nicht verschwindet, liegt  $\underline{u}^*(t)$  auf einer seiner beiden Grenzen und ist daher konstant. Es gilt also für dieses Intervall Gl. (A.2-34) und somit auch  $\dot{H} = 0$  (vgl. Gl. (A.2-31)). Diese Aussagen sind im sogenannten schwachen Minimumprinzip wie folgt zusammengefaßt: entlang einer optimalen Trajektorie ist die Hamiltonfunktion für einen optimalen Steuervektor  $\underline{u}^*(t)$ , der innerhalb des zulässigen Gebietes an einer differenzierbaren Stelle liegt, stationär. Die Hamiltonfunktion weist hinsichtlich einer Steuervariablen, die auf der Grenze oder im Inneren des zulässigen Bereiches an einer nicht differenzierbaren Stelle liegt, ein relatives Minimum (in Ausnahmefällen auch einen stationären Wert) auf. Die Hamiltonfunktion ist konstant entlang einer optimalen Trajektorie und hat den Wert Null, wenn die Endzeit nicht spezifiziert ist.

Dieses schwache Minimumprinzip ergibt sich unter der Voraussetzung (A.2-1), d.h. unter der Annahme hinreichend kleiner Variationen  $\delta \underline{u}^*(t)$  für  $0 \leq t \leq \theta^*$ . Eine wesentlich genauere Aussage läßt sich jedoch herleiten, wenn man von endlichen Variationen  $\delta \underline{u}^*(t)$  innerhalb eines hinreichend kleinen Zeitintervalls  $\Delta$  ausgeht: Es wird wieder angenommen, daß die optimale Steuerfunktion  $\underline{u}^*(t)$  und ihr zugehöriger Zustandsvektor  $\underline{x}^*(t)$  existieren, und daß zur Zeit  $t_1$  der von der optimalen Trajektorie  $\underline{x}^*(t)$  abweichende Zustand

$$\underline{x}(t_1) = \underline{x}^*(t_1) + \delta \underline{x}^*(t_1) \quad \text{mit} \quad |\delta \underline{x}^*(t_1)| \leq \varepsilon \quad (\text{A.2-39})$$

vorliegt. Dieser Zustand wird dadurch erreicht, daß man nur innerhalb des hinreichend kleinen Zeitintervalls  $t_1 - \Delta \leq t \leq t_1$  eine endliche Variation  $\delta \underline{u}^*(t)$  anbringt:

$$\underline{u}(t) = \underline{u}^*(t) + \delta \underline{u}^*(t) \quad . \quad (\text{A.2-40})$$

Dies führt dazu, daß zu allen Zeitpunkten, die kleiner als  $t_1 - \Delta$  sind, überhaupt keine Änderungen erfolgen, d.h.

$$\delta \underline{x}^*(t) = \underline{0} \quad 0 \leq t \leq t_1 - \Delta \quad (\text{A.2-41})$$

Da man für  $t_1 < t \leq \theta^*$  die optimale Steuerung  $\underline{u}^*(t)$  benutzt, d.h.  $\delta \underline{u}^* = \underline{0}$  ist, ergibt sich für diesen Zeitraum aus Gl. (A.2-9)

$$\delta \dot{\underline{x}}^*(t) = \underline{A}(t) \delta \underline{x}^*(t) + \underline{0}(\varepsilon) \quad t_1 < t \leq \theta^* \quad (\text{A.2-42})$$

Die der Gl. (A.2-12) entsprechende Beziehung (Greensche Identität) lautet:

$$\underline{p}^T(\theta^*) \delta \underline{x}(\theta^*) = \underline{p}^T(t_1) \delta \underline{x}^*(t_1) + \underline{0}(\varepsilon) \quad (\text{A.2-43})$$

Die Variation der Zielfunktion läßt sich für fixierte Endzeit  $\theta^*$  allgemein (vgl. Gl. (A.2-10)) bzw. mit Hilfe der Endbedingung (A.2-15) als

$$\delta F^* = \left[ \frac{\partial F^*}{\partial \underline{x}} \right]^T \delta \underline{x}^*(\theta^*) = \underline{p}^T(\theta^*) \delta \underline{x}^*(\theta^*) \quad (\text{A.2-44})$$

formulieren. Für Gl. (A.2-44) kann man, wie im folgenden ge-

zeigt wird, auch

$$\delta \mathbf{r}^* = \mathbf{p}^T(t_1) [\mathbf{f}(\mathbf{x}^*(t_1), \mathbf{u}(t_1)) - \mathbf{f}(\mathbf{x}^*(t_1), \mathbf{u}^*(t_1))] \Delta + O(\Delta) \quad (\text{A.2-45})$$

schreiben. Die Integration von  $\mathbf{f}(\mathbf{x}(t), \mathbf{u}(t))$  ergibt nämlich

$$\mathbf{x}(t) = \mathbf{x}^*(t_1 - \Delta) + \int_{t_1 - \Delta}^t \mathbf{f}(\mathbf{x}(t), \mathbf{u}^*(t) + \delta \mathbf{u}^*(t)) dt \quad (\text{A.2-46})$$

$t_1 - \Delta \leq t \leq t_1$

bzw. die Integration von  $\mathbf{f}(\mathbf{x}^*(t), \mathbf{u}^*(t))$

$$\mathbf{x}^*(t) = \mathbf{x}^*(t_1 - \Delta) + \int_{t_1 - \Delta}^t \mathbf{f}(\mathbf{x}^*(t), \mathbf{u}^*(t)) dt \quad (\text{A.2-47})$$

$t_1 - \Delta \leq t \leq t_1$

Die Differenz der beiden letzten Gleichungen liefert die Variation des Zustandsvektors

$$\delta \mathbf{x}^*(t) = \int_{t_1 - \Delta}^t [\mathbf{f}(\mathbf{x}(t), \mathbf{u}^*(t) + \delta \mathbf{u}^*(t)) - \mathbf{f}(\mathbf{x}^*(t), \mathbf{u}^*(t))] dt$$

$t_1 - \Delta \leq t \leq t_1$  (A.2-48)

Die Beträge der einzelnen Komponenten von  $\delta \mathbf{x}^*(t)$  kann man abschätzen:

$$|\delta x_i^*(t)| \leq \left[ \max_{t_1 - \Delta < t < t_1} \{ f_i(\mathbf{x}(t), \mathbf{u}^*(t) + \delta \mathbf{u}^*(t)) - f_i(\mathbf{x}^*(t), \mathbf{u}^*(t)) \} \right] \cdot (t - t_1 + \Delta) \quad (\text{A.2-49})$$

Gl. (A.2-49) besagt, daß  $\delta x_i$  von der gleichen Größenordnung wie  $\Delta$  ist.

Die Taylorentwicklung von  $\underline{f}(\underline{x}(t), \underline{u}^*(t) + \delta \underline{u}^*(t))$  lautet:

$$\underline{f}(\underline{x}, \underline{u}^* + \delta \underline{u}^*) = \underline{f}(\underline{x}^*, \underline{u}^* + \delta \underline{u}^*) + \underline{C} \delta \underline{x} \quad (\text{A.2-50})$$

Die  $n \times n$  Matrix

$$\underline{C} = \left[ \frac{\partial f_i}{\partial x_j} \right] \quad (\text{A.2-51})$$

wird hierbei zwischen  $\underline{x}$  und  $\underline{x}^*$  berechnet. Berücksichtigt man, daß wegen Gl. (A.2-49) (wenn  $\delta x_i^*$  von der Größenordnung  $\Delta$  ist, muß ein Integral von  $\delta x_i^*$  über ein Intervall  $\Delta$  von der Größenordnung  $\Delta^2$  sein)

$$\int_{t_1 - \Delta}^{t_1} \underline{C} \delta \underline{x}^*(t) dt = \underline{O}(\Delta) \quad (\text{A.2-52})$$

gilt, dann kann man Gl. (A.2-48) für  $t = t_1$  auch als

$$\delta \underline{x}^*(t_1) = \int_{t_1 - \Delta}^{t_1} [\underline{f}(\underline{x}^*(t), \underline{u}^*(t) + \delta \underline{u}^*(t)) - \underline{f}(\underline{x}^*(t), \underline{u}^*(t))] dt + \underline{O}(\Delta) \quad (\text{A.2-53})$$

schreiben. Wenn innerhalb des Intervalls  $t_1 - \Delta < t < t_1$  sowohl  $\underline{u}$  als auch der Integrand von Gl. (A.2-53) stetig sind, kann man

$$\delta \underline{x}^*(t_1) = \underline{f}(\underline{x}^*(t_1), \underline{u}^*(t_1) + \delta \underline{u}^*(t_1)) - \underline{f}(\underline{x}^*(t_1), \underline{u}^*(t_1)) \Delta + \underline{O}(\Delta) \quad (\text{A.2-54})$$

setzen. Damit wird

$$p^T(t_1) \delta \underline{x}^*(t_1) = p^T(t_1) [\underline{f}(\underline{x}^*(t_1), \underline{u}^*(t_1) + \delta \underline{u}^*(t_1)) - \underline{f}(\underline{x}^*(t_1), \underline{u}^*(t_1))] \Delta + \underline{O}(\Delta) \quad (\text{A.2-55})$$

Die Gleichungen (A.2-43), (A.2-44) und (A.2-55) ergeben Gl. (A.2-45). Die Optimalitätsbedingung  $\delta F^* \geq 0$  erfordert somit für  $t = t_1$

$$\Delta p^T \underline{f}(\underline{x}^*, \underline{u}^* + \delta \underline{u}^*) + \underline{O}(\Delta) \geq \Delta p^T \underline{f}(\underline{x}^*, \underline{u}^*) \quad (\text{A.2-56})$$

oder wenn man den Grenzübergang  $\Delta \rightarrow 0$  vollzieht

$$p^T \underline{f}(\underline{x}^*, \underline{u}^* + \delta \underline{u}^*) \geq p^T \underline{f}(\underline{x}^*, \underline{u}^*) \quad (\text{A.2-57})$$

Formuliert man Gl. (A.2-57) mit Hilfe der Hamiltonfunktion, so ergibt sich für jeden Zeitpunkt

$$H(\underline{x}^*(t), p^*(t), \underline{u}(t)) \geq H(\underline{x}^*(t), p^*(t), \underline{u}^*(t)) \quad (\text{A.2-58})$$

d.h. die Hamiltonfunktion nimmt ihren kleinsten Wert an, wenn als Steuervektor der optimale Steuervektor  $\underline{u}^*(t)$  benutzt wird. Diese Aussage bezeichnet man als sog. starkes Minimumprinzip.

Auch für den Fall nicht fixierter Endzeit  $\theta^*$  führt eine entsprechende Analyse zu Gl. (A.2-58).

# Symbolverzeichnis

## Lateinische Buchstaben

|                               |                                                                   |
|-------------------------------|-------------------------------------------------------------------|
| <u>A</u>                      | Matrix der ersten Ableitungen (vgl. Gl. (4.1-6) bzw. Gl. (A.2-7)) |
| <u>a<sub>i</sub></u>          | Parametervektoren (vgl. Gl. (4.2-25))                             |
| <u>B</u>                      | Matrix der ersten Ableitungen (vgl. Gl. (A.2-8))                  |
| <u>b</u>                      | Rührerblattbreite [ m ]                                           |
| <u>C</u>                      | Matrix der ersten Ableitungen (vgl. Gl. (A.2-51))                 |
| <u>c</u>                      | Superpositionskoeffizienten (vgl. Gl. (4.2-20))                   |
| <u>c<sub>p</sub></u>          | Spezifische Wärme [ kcal/kg °K ]                                  |
| <u>c</u>                      | Konzentration [ kmol/m <sup>3</sup> ]                             |
| <u>D<sub>s</sub></u>          | Krümmungsdurchmesser der Heizschlange [ m ]                       |
| <u>D<sub>i</sub></u>          | Innendurchmesser des Reaktors [ m ]                               |
| <u>d<sub>i</sub></u>          | Innendurchmesser der Heizschlange [ m ]                           |
| <u>E</u>                      | Aktivierungsenergie [ kcal/kmol ]                                 |
| <u>F</u>                      | Wärmeübertragungsfläche [ m <sup>2</sup> ]                        |
| <u>F</u>                      | Zielfunktion                                                      |
| <u><math>\tilde{F}</math></u> | Modifizierte Zielfunktion                                         |
| <u><math>\hat{F}</math></u>   | Modifizierte Zielfunktion                                         |
| <u>F<sup>(i)</sup></u>        | Zielfunktion des i-ten Teilproblems (vgl. Gl. (4.2-21))           |
| <u>f</u>                      | Rechte Seite eines Differentialgleichungssystems                  |
| <u>f</u>                      | Restanteil                                                        |
| <u><math>\bar{E}</math></u>   | Rechte Seite eines Differentialgleichungssystems                  |
| <u>G</u>                      | Gewichtsfunktion                                                  |
| <u>(-ΔH<sub>R</sub>)</u>      | Reaktionsenthalpie [ kcal/kmol ]                                  |
| <u>H</u>                      | Hamiltonfunktion                                                  |

|          |                                                                            |
|----------|----------------------------------------------------------------------------|
| <u>J</u> | Jacobi-Matrix (vgl. Gl. (4.2-15))                                          |
| $k_2$    | Reaktionsgeschwindigkeitskonstante [ $\text{m}^3/\text{kmol h}$ ]          |
| $k$      | Wärmedurchgangszahl [ $\text{kcal}/\text{m}^2 \text{ h } ^\circ\text{K}$ ] |
| $k_{20}$ | Stoßfaktor [ $\text{m}^3/\text{kmol h}$ ]                                  |
| L        | Länge der Heizschlange [m]                                                 |
| l        | Länge [m]                                                                  |
| M        | Masse [kg]                                                                 |
| N        | Elektrische Heizleistung [kcal/h]                                          |
| Nu       | Nusseltzahl                                                                |
| $n_s$    | Rührerdrehzahl pro Sekunde                                                 |
| n        | Anzahl der Diskretisierungsstellen                                         |
| Pr       | Prandtlzahl                                                                |
| <u>p</u> | Vektor der adjungierten Variablen                                          |
| <u>Q</u> | Stündlich übertragende Wärmemenge [kcal/h]                                 |
| q        | Volumetrischer Durchsatz [ $\text{m}^3/\text{h}$ ]                         |
| R        | Universelle Gaskonstante [kcal/kmol $^\circ\text{K}$ ]                     |
| r        | Reaktionsgeschwindigkeit [kmol/h]                                          |
| r        | Radius [m]                                                                 |
| T        | Temperatur [ $^\circ\text{K}$ ]                                            |
| t        | Zeit [h]                                                                   |
| <u>u</u> | Vektor der Steuervariablen                                                 |
| u        | Ionenbeweglichkeit [ $\text{m}^3/\text{kmol } \Omega \text{ m}$ ]          |
| V        | Reaktionsvolumen [ $\text{m}^3$ ]                                          |
| w        | Mittlere Strömungsgeschwindigkeit [m/h]                                    |
| <u>x</u> | Vektor der Zustandsvariablen                                               |
| <u>y</u> | Vektor der Zustandsvariablen und adjungierten Variablen                    |

### Griechische Buchstaben

|               |                                                                    |
|---------------|--------------------------------------------------------------------|
| $\alpha$      | Wärmeübergangszahl [ $\text{kcal/m}^2 \text{ h } ^\circ\text{K}$ ] |
| $\delta_w$    | Wandstärke der Heizschlange [m]                                    |
| $\varepsilon$ | Kleine positive Größe                                              |
| $\varepsilon$ | Kritischer Wert des Abbruchkriteriums                              |
| $\theta$      | Endzeit [h]                                                        |
| $\alpha$      | Spezifische Leitfähigkeit [ $1/\Omega\text{m}$ ]                   |
| $\lambda$     | Wärmeleitzahl [ $\text{kcal/m h } ^\circ\text{K}$ ]                |
| $\nu$         | Kinematische Zähigkeit [ $\text{m}^2/\text{h}$ ]                   |
| $\rho$        | Dichte [ $\text{kg/m}^3$ ]                                         |
| $\tau$        | Verweilzeit [h]                                                    |
| $\gamma$      | Korrekturfaktor (vgl. Gl. (3.2-7))                                 |

### Indices

|    |                                      |
|----|--------------------------------------|
| A  | Austritt                             |
| Ac | $\text{CH}_3\text{COO}^{(-)}$ -Ionen |
| a  | Außenseite                           |
| E  | Eintritt                             |
| H  | Heizmedium                           |
| i  | Innenseite                           |
| i  | i-te Diskretisierungsstelle          |
| M  | Mitte                                |
| Na | $\text{Na}^{(+)}$ -Ionen             |
| OH | $\text{OH}^{(-)}$ -Ionen             |
| s  | Stationär                            |
| w  | Wand                                 |

|          |                            |
|----------|----------------------------|
| o        | Zulauf bzw. Anfangszustand |
| $\infty$ | Grenzzustand               |
| $\theta$ | Endzustand                 |

#### Sonderzeichen

|   |                                                           |
|---|-----------------------------------------------------------|
| * | Kennzeichnet Optimum                                      |
| ~ | Kennzeichnet Modifikation                                 |
| ^ | Kennzeichnet dimensionslose Größe bzw. modifizierte Größe |
| - | Kennzeichnet bestimmte Entwicklungsstelle                 |

# Literaturverzeichnis

- [1] WEI, J.: J.Catalysis 3 (1964) 299
- [2] SLINKO, M.G.: Brit.Chem.Eng. 16 No 4/5 (1971) 363
- [3] HOFFMANN, U., HOFMANN, H.: "Einführung in die Optimierung", Verlag Chemie, Weinheim (1971)
- [4] ARIS, R., AMUNDSON, N.R.: Chem.Eng.Sci. 7 (1958) 121
- [5] HOFMANN, H., HOFFMANN, U.: Ind.Chim.Belge 31 (1966) 326
- [6] DOUGLAS, J.M.: Ind.Engng.Chem.Proc.Design Develop. 6 (1967) 43
- [7] HORN, F.J.M., LIN, R.C.: Division of Ind.Engng.Chem. 151st Meeting, ACS, Pittsburgh, Pa. (1966)
- [8] DOUGLAS, J.M., RIPPIN, D.W.T.: Chem.Eng.Sci. 21 (1966) 305
- [9] NEMANIC, D.J., TIERNEY, J.W., ARIS, R., AMUNDSON, N.R.: Chem.Eng.Sci. 11 (1959) 199
- [10] SIEBENTHAL, C.D., ARIS, R.: Chem.Eng.Sci. 19 (1964) 729
- [11] JACKSON, R.: Chem.Eng.Sci. 21 (1966) 241
- [12] GOULD, E.S.: "Mechanismus und Struktur in der organischen Chemie", Verlag Chemie, Weinheim (1964) 374-377
- [13] TOMMILA, E., KOIVISTO, A., LYYRA, J.P., ANTELL, K., HEIMO, S.: Ann.Acad.Sci.Fenicae AII (1952) No 47
- [14] WADSÖ, I.: Acta Chem.Scand. 16 No 2 (1962) 16
- [15] PATAT, F., KIRCHNER, K.: "Praktikum der Technischen Chemie", Verlag Walter de Gruyter u. Co, Berlin (1968) 171
- [16] FOERST, W.: "Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie", Verlag Urban und Schwarzenberg, München, 6. Band (1955) 797
- [17] VDI-Wärmeatlas, Herausgeber: Verein Deutscher Ingenieure, VDI-Verlag Düsseldorf (1963) Blatt Cb2
- [18] Ibid., Blatt Gb1
- [19] Ibid., Blatt Gb6
- [20] Ibid., Blatt Ma1

- [21] ANANTAKRISHNAN, S.V., ANANTARAMAN, A.V.:  
Proc.Indian Acad.Sci. 41 (1959) 86
- [22] RICHTER, E.: Unveröffentlichter Bericht des Instituts  
für Technische Chemie I, Universität Erlangen-Nürnberg
- [23] RICHTER, E., HOFFMANN, U.: "LINREG"-Fortran IV-Pro-  
gramm, Programmbibliothek des Instituts für Technische  
Chemie I, Universität Erlangen-Nürnberg
- [24] HOFFMANN, U., RICHTER, E.: "QUAREG"-Fortran IV-Pro-  
gramm, Programmbibliothek des Instituts für Technische  
Chemie I, Universität Erlangen-Nürnberg
- [25] EFROYMSON, M.A.: "CRRG"-Fortran IV-Programm, Programm-  
bibliothek des Instituts für Technische Chemie I,  
Universität Erlangen-Nürnberg
- [26] KRAMERS, H., WESTERTEP, K.R.: "Elements of Chemical  
Reactor Design and Operation", Verlag Netherland  
University Press, Amsterdam (1963) 72
- [27] MERSON, R.: "An operational method for study of  
integration processes", Proc.Symp.Data Processing.  
Weapons Research Establishment, Salisbury, Australia  
(1957)
- [28] KIEFER, J.: Proc.Am.Math.Soc. 4 (1953) 502-506
- [29] PONTRJAGIN, L.S., BOLTJANSKIJ, V.G., GRAMKRELIDZE, R.V.,  
MISCENKO, E.F.: "Mathematische Theorie Optimaler Pro-  
zesse", Verlag Oldenbourg, München (1964) 26
- [30] ROSENBROCK, H.H., STOREY, C.: "Computational Techniques  
for Chemical Engineers", Verlag Pergamon Press,  
Oxford (1966) 233
- [31] Ibid., 218-221
- [32] DENN, M.M.: "Optimization by Variational Methods",  
Verlag Mc Graw-Hill, New York (1969) 298
- [33] Ibid., 295-298
- [34] KELLEY, H.J. in LEITMANN, G.: "Optimization Techniques",  
Verlag Academic Press, New York (1962) 205-254
- [35] HORN, F.: "Seminar über Optimierprobleme"  
Veranstaltet vom Institut für Technische Chemie,  
Technische Hochschule München (1967)
- [36] FUNK, P.: "Variationsrechnung und ihre Anwendung in  
Physik und Technik", Verlag Springer, Berlin (1962) 275
- [37] MOYER, H.G., PINKHAM, G. in BALAKRISHNAN, A.V.,  
NEUSTADT, L.W.: "Computing Methods in Optimizations  
Problems", Verlag Academic Press, New York (1964)  
92-94

- [38] LEE, E.S.: "Quasilinearization and Invariant Imbedding", Verlag Academic Press, New York (1968) 21
- [39] DENN, M.M.: "Optimization by Variational Methods", Verlag Mc Graw-Hill, New York (1969) 311
- [40] ROSENBROCK, H.H., STOREY, C.: "Computational Techniques for Chemical Engineers", Verlag Pergamon Press, Oxford (1966) 232
- [41] NELDER, J.A., MEAD, R.: Computer J. 7 (1965) 308-318
- [42] ARIS, R.: "Elementary Chemical Reactor Analysis", Verlag Prentice Hall, Englewood Cliffs, N.J. (1969) 62-69
- [43] KÖPPNER, M.: Unveröffentlichter Bericht des Instituts für Technische Chemie I, Universität Erlangen-Nürnberg



Herrn Prof. Dr. H. Hofmann danke ich für seine vielseitige Unterstützung und zahlreichen Ratschläge bei der Durchführung dieser Arbeit.

Weiterhin danke ich Frau Bernsdorf für die sorgfältige Anfertigung der Zeichnungen, Frau Deschermeyer und Herrn Rühl für ihre tatkräftige Mithilfe bei der Durchführung der Versuche und Herrn Schneider und Herrn Scheler für ihre Mitarbeit beim Aufbau der Apparatur.



## Lebenslauf

|                        |                                                                                                                 |
|------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 23.2.1938              | geb. in Berlin<br>Vater: Herbert Hoffmann, Bankkaufmann<br>Mutter: Herta geb. Schwartz                          |
| 1944 - 1949            | Volksschule in Baiersdorf (Sachsen)<br>und Mühlheim/Main                                                        |
| 1949 - 1958            | Realgymnasium in Offenbach/Main und<br>Frankfurt/Main                                                           |
| 4.3.1958               | Reifeprüfung                                                                                                    |
| 1958 - 1965            | Maschinenbau-Studium<br>Technische Hochschule Braunschweig<br>und Darmstadt                                     |
| 20.11.1964             | Diplom-Hauptprüfung<br>(Hauptfach: Chemische Technologie)                                                       |
| 15.11.1964 - 15.5.1965 | Wissenschaftlicher Mitarbeiter am<br>Institut für Chemische Technologie<br>der Technischen Hochschule Darmstadt |
| 20.5.1965 - 15.6.1966  | Wissenschaftlicher Mitarbeiter am<br>Institut für Technische Chemie I der<br>Universität Erlangen-Nürnberg      |
| seit 16.6.1966         | Wissenschaftlicher Assistent am<br>Institut für Technische Chemie I der<br>Universität Erlangen-Nürnberg        |





## **Offsetdruck-Fotodruck**

J. Hogl, 8520 Erlangen Hauptstr. 109, (Nähe Martin-Luther-Platz) Tel. 22990